

Nichtsequentielle Doppelionisation von Argon in starken Laserfeldern

Eine Untersuchung des Rückstreuprozesses

Diplomarbeit von Susanne Kammer

Johann Wolfgang Goethe Universität

Frankfurt am Main

August 2003

Meinem Opa

„Die Lust zum Wissen wird bei dem Menschen zuerst dadurch angeregt, dass er bedeutender Phänomene gewahr wird, die seine Aufmerksamkeit an sich ziehen. Damit nun diese dauernd bleibe, so muss sich eine innige Teilnahme finden, die uns nach und nach mit den Gegenständen bekannter macht. Alsdann bemerken wir erst eine große Mannigfaltigkeit, die uns als Menge entgegendringt. Wir sind genötigt zu sondern, zu unterscheiden und wieder zusammenzustellen, wodurch zuletzt eine Ordnung entsteht, die sich mit mehr oder weniger Zufriedenheit übersehen lässt.“

JOHANN WOLFGANG V. GOETHE, FARBENLEHRE

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	„On a Piece of Chalk“	1
1.2	Die Qual der Wahl	2
2	Theoretische Grundlagen	4
2.1	Licht und Materie	4
2.1.1	„Atomos“	4
2.1.2	Photonen	5
2.2	Laser-Materie Wechselwirkung	5
2.2.1	Laser	5
2.2.2	Atome in starken Laserfeldern: Wichtige Phänomene . . .	7
2.3	ATI-Peaks	10
2.4	High Harmonic Generation	12
2.5	Nicht-sequentielle Doppelionisation	15
2.5.1	Recoil-Impulse	17
2.5.2	Anregung	19
2.5.3	Elektronen-Impulse	21
2.5.4	Quantitative Modelle	26
3	Experimentelle Grundlagen	29
3.1	COLTRIMS	29
3.1.1	Gastarget	30
3.1.2	Spektrometer	33
3.1.3	Detektoren	37
3.1.4	Aufnahmesystem	41
3.2	Besonderheit eines Laser	41
3.2.1	Ti:Sa-Lasersysteme	41
3.2.2	Welleneigenschaft des Laserlichtes	44
4	Experimentelle Realisierung	47
4.1	COLTRIMS-Aufbau	47
4.1.1	Gasjet	47
4.1.2	Spektrometer und Detektoren	48
4.1.3	Elektronik	54
4.2	Laserspezifikationen	56

5	Messung und Eichung	58
5.1	Messreihen	58
5.2	Eichung	58
5.2.1	Flugzeit, Auftrefforte und umgebende Felder	60
5.2.2	Impulse	65
5.2.3	Untergrund	67
6	Ergebnisse und Interpretation	69
6.1	Vorherige Ergebnisse	69
6.1.1	Marburg-Messung 1999	69
6.1.2	Frankfurt-Messung 2000/2001	70
6.2	Kanada-Ergebnisse - Longitudinale Polarisierung	71
6.2.1	Nichtsequentielle Doppelionisation unterhalb der Schwelle	71
6.2.2	Nichtsequentielle Doppelionisation in Abhängigkeit von der Intensität	75
6.2.3	Separation von Anregung und (e,2e)-Stoß	77
6.3	Kanada-Ergebnisse - Vertikale Polarisierung	83
6.3.1	Korrelierte Elektronenbewegung	84
6.3.2	Einfluss des Ions	86

Übersicht

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert:

Kapitel 1 gibt einen kurzen Einblick in die Historie der Physik und soll gleichzeitig zeigen, wie wichtig es in der Wissenschaft ist, Fragen zu stellen. Weiter wird hier kurz auf die Wahl zu dieser Diplomarbeit eingegangen.

Kapitel 2 beschreibt die Grundlagen zu dem Bereich „Wechselwirkung von Materie mit starken Laserfeldern“. Speziell wird auf die nichtsequentielle Doppelionisation eingegangen mit einem Überblick über die verschiedenen quantitativen Modellen.

Kapitel 3 gibt einen allgemeinen Überblick von einem COLTRIMS-Aufbau und die Pulserzeugung in einem Ti:Sa-Lasersystem.

Kapitel 4 zeigt die speziellen Anordnungen von Jet, Spektrometer und Detektoren unserer Apparatur, sowie des in Ottawa stehenden Lasersystems.

In **Kapitel 5** wird anhand einer Messreihe das Koordinatensystem und die Eichung der experimentellen Daten vorgestellt.

Kapitel 6 zeigt die Ergebnisse zur Doppelionisation von Argon bei verschiedenen Intensitäten und Laserpolarisationen und vergleicht sie mit vorherigen Daten aus unserer Gruppe.

In **Kapitel 7** wird die Arbeit zusammengefasst und in einem Ausblick wird sich mit der „Art“ und dem „Erfolg“ der verwendeten Messtechnik auseinandergesetzt und mögliche Erweiterungen bzw. neue Methoden vorgestellt.

Kapitel 1

Einleitung

1.1 „On a Piece of Chalk“

Die Neugier ist eine der beim Menschen am stärksten ausgeprägten Eigenschaft. Sie ist eine wesentliche Antriebskraft für wissenschaftliche Forschung, dem Wunsch nach geistiger Bereicherung durch Begreifen unserer Welt und dem ganz pragmatischen Verlangen, physikalische Effekte für die Verbesserung unserer Lebensqualität zu nutzen. In Laufe der Geschichte gelang es Forschern, viele grundlegende physikalische Mechanismen zu entschlüsseln. Doch bereits Moleküle führen zu hochgradig komplexen Vielteilchensystemen, die sich nur durch Näherungen handhaben lassen. Die Kenntnis der grundlegenden physikalischen Gesetzmäßigkeiten allein genügt nicht mehr, da die schier unendliche Anzahl der möglichen Wechselwirkungen ab einer bestimmten Teilchenzahl *prinzipiell* nicht mehr überblickt werden kann:

Das Ganze ist mehr als die Summe der Teile!

Auch die Wissenschaft besteht nicht aus vielen kleinen, voneinander unabhängigen Gebieten. Umso wichtiger ist es, interdisziplinär zusammenzuarbeiten. Nur dadurch *lernt* man, Probleme von mehreren Sichtweisen aus zu betrachten und auch das Offensichtliche, „Triviale“ in Frage zu stellen.

Im Jahre 1868, als die Menschen durch die Ideen Darwins aufgerüttelt worden waren, hielt Thomas H. Huxley eine Rede vor der British Association mit dem Titel „On a Piece of Chalk“. Seine Intention bestand damals darin, anhand der natürlich vorkommenden Kreideschichten in Gesteinsmassen zu zeigen, dass die Welt älter als die in der Bibel beschriebenen sechstausend Jahre sein muss. Doch die Entwicklung der Fragen lässt sich noch weiter verfolgen:

Kreide ist weiß. Warum? Schon in Huxley's Zeit war bekannt, dass jeder Farbe eine feste Wellenlänge zugeordnet werden kann und dass weißes Licht die Überlagerung vieler verschiedener Wellenlängen ist. Trifft Licht auf eine Oberfläche, wird ein Teil des Lichtes absorbiert und nur das reflektierte Restlicht zeigt uns die charakteristische Farbe, in der wir den Gegenstand sehen. Im Fall der Kreide absorbiert das Calciumcarbonat nur im infraroten und ultravioletten

Wellenlängenbereich und reflektiert in dem für uns sichtbaren Bereich. Kreide erscheint uns weiß.

Warum absorbieren manche Substanzen sichtbares Licht und andere nicht? Die Antwort fand sich in den Energiebetrachtungen von Licht und Atomen in den Anfängen des zwanzigsten Jahrhunderts. Nach Einstein besteht ein Lichtstrahl aus masselosen Partikeln (Photonen) mit jeweils festen Energien; jedem Photon kann so eine Wellenlänge zugeordnet werden. Bohr schlug 1913 ein Modell vor, in dem Atome und Moleküle nur in definierten Zuständen existieren können. Der Grundzustand zeichnet sich durch die Konfiguration mit der niedrigsten Energie aus. Beide Ideen zusammen zeigen uns, dass ein Atom oder Molekül nur dann Licht absorbieren kann, wenn die Photonenergie genau der Differenz zwischen zweien, dieser festen Zuständen entspricht.

Warum besitzen Atome und Moleküle nur diskrete Energieniveaus? Und warum kommt Licht in einzelnen Partikeln vor, deren Energie invers proportional zu der Wellenlänge ist? Eine Erklärung ergab sich erst in den zwanziger Jahren des letzten Jahrhunderts mit der Entwicklung der Quantenmechanik und in der Beschreibung der Physik durch Wellenfunktionen. Teilchen verhalten sich demnach wie Licht- oder Schallwellen; das Quadrat der Magnitude dieser Wellen gibt eine Wahrscheinlichkeit an, das Teilchen an einem bestimmten Ort zu finden. Analog zu einer stehenden Welle, die nur zwischen zwei Wänden stabil bleiben kann, nimmt die Wellenfunktion eines Elektrons in einem Atom nur bestimmte Quantenzustände mit den zugehörigen Energien an. Weitere quantenmechanische Rechnungen zeigen, dass Elektronen in höher gelegenen Energiezuständen viel schwächer an das Atom gebunden sind und sich so leichter lösen lassen. Für Licht lassen sich die gleichen Betrachtungen anstellen und es ergibt sich auch hier ein Welle-Teilchen-Dualismus.

Warum macht die Quantenmechanik keinen Unterschied zwischen Materie und Licht? Warum besteht das Atom aus einem Kern und Elektronen? Warum gibt es überhaupt so etwas wie Licht? Diese Fragen können zum Teil mit dem in den 80er Jahren entwickelten Standardmodell beantwortet werden. Demnach wird jedem Teilchen ein Feld zugeordnet; der Kräfteaustausch zwischen den Teilchen wird durch ein weiteres Teilchen, das sog. Austauschteilchen, übertragen. Im Fall der elektromagnetischen Wechselwirkung ist dies z.B. das masselose Photon.

Dieses Spiel lässt sich beliebig weiter führen, die Situation ist vergleichbar mit der eines Schachspiels. Die wenigen Grundregeln und der momentane Spielstand ist bekannt, und dennoch kann jeder weitere Zug einer Figur die bestehende Ordnung zerstören. Der Ablauf des Spiels kann nicht vorhergesehen werden.

1.2 Die Qual der Wahl

In der Frankfurter Universität begibt man sich schon sehr früh auf die Suche nach einer Diplomarbeit. Mit keiner Vorstellung, wie man ein ganzes Jahr lang ein und dasselbe Thema bearbeiten kann bzw. wieviel Aufwand eine solche Arbeit mit sich bringt, liegen die ersten entscheidenden Kriterien natürlich bei dem

Interesse an einem Teilgebiet der Physik. Aber auch die dazugehörige Arbeitsgruppe spielt eine Rolle: Groß sollte sie sein, mit Kontakten zu vielen weiteren Gruppen in der Welt, so dass ein Aufenthalt im Ausland möglich wird. Für die Diplomarbeit selbst war es mein Wunsch, einen Überblick über ein gesamtes Experiment zu bekommen: Planung und Aufbau, Durchführung mit der dazugehörigen Improvisation, Auswertung und Theorie. Gesucht und gefunden!

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Wechselwirkung von Materie mit starken Laserfeldern und ist eine Fortsetzung von früheren Arbeiten in der Gruppe um H. Schmidt-Böcking und R. Dörner am Institut für Kernphysik [1, 2].

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Laser-Materie Wechselwirkungen sind in den letzten Jahren zu einem eigenständigen, sich rasch entwickelnden Gebiet der Physik geworden. Möglich gemacht wurde dies durch die schnelle Entwicklung von starken Lasersystemen. Durch eine geschickte Kombination von Oszillator und Verstärker erhält man Spitzenintensitäten von über $10^{20}\text{W}/\text{cm}^2$.

Befindet sich ein Atom in einem solchen starken Laserfeld, so treten weitere Effekte wie Above Threshold Ionisation (ATI), Erzeugung höher Harmonischer (HHG) oder Multiphotonionisation auf. Mit Hilfe von gemessenen Impulsverteilungen lässt sich der Rückstreumechanismus verifizieren: Das erste Elektron tunnelt durch eine vom Coulomb- und Laserfeld aufgebaute Potentialbarriere, nimmt im Laserfeld Energie auf und kann bei Umkehr der Phase zurück zum Mutterion beschleunigt werden. Dieses zurückkehrende Elektron kann das zweite Elektron sofort ionisieren oder es kommt erst zu einer Anregung mit nachfolgender Feldionisation.

Einige theoretische Modelle für die Doppelionisation basieren auf der von Keldysh, Faisal und Reiss entwickelten KFR-Theorie und können in einem Feynmangraphen dargestellt werden. Dieser zeigt zwar den ablaufenden Mechanismus sehr gut, gibt allerdings keine Informationen über den zeitlichen Ablauf.

2.1 Licht und Materie

2.1.1 „Atomos“

Ziel der Atomphysik ist das Verständnis vom Aufbau der Atome, ihrer Struktur und Wechselwirkungen untereinander, sowie mit äußeren elektrischen und magnetischen Feldern.

Die ersten Theorien über den Aufbau der Materie stammen von Demokrit (460-370 v.Chr.) und Aristoteles (384-322 v.Chr.). Danach dauerte es mehr als zwei Jahrtausende, bis aus der spekulativen Atomistik eine der am genauesten, experimentell überprüften Feldtheorie entstand. Diese sogenannte Quantenelektrodynamik beschreibt die relativistische Quantisierung des elektromagnetischen Feldes und erweitert damit das Verständnis elektromagnetischer Vorgänge, das

vorher von der klassischen Elektrodynamik von J. Maxwell aus dem 19. Jahrhundert und der Dirac-Theorie bestimmt war. Die elektromagnetische Wechselwirkung lässt sich in diesem Bild auf die Absorption und Emission von virtuellen Photonen vereinfachen.

2.1.2 Photonen

Licht wird in der Physik sowohl als Welle als auch als Teilchen (den sogenannten Photonen) betrachtet. Für die Energie eines Photons gilt $E = h\nu$, wobei $h = 6,6261 \cdot 10^{-34} Js$ das Planck'sche Wirkungsquantum und ν die Frequenz des Lichtes bzw. der elektromagnetischen Strahlung (also auch z.B. Gamma- oder Röntgenstrahlung) darstellt.

Für den Impuls eines Photons, auch Quantenimpuls p genannt, gilt $p = \frac{h\nu}{c}$, wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist. Die Richtung des Impulses ist die Ausbreitungsrichtung der Strahlung. Nach der speziellen Relativitätstheorie haben Photonen eine Ruhemasse von Null, da sie sich stets im Vakuum mit Lichtgeschwindigkeit ausbreiten. Die Teilchen haben außerdem weder eine elektrische Ladung noch ein magnetisches Moment, da sie sich nicht durch entsprechenden Felder ablenken lassen.

Max Planck stellte die Theorie auf, dass Materie Energie nicht beliebig, sondern nur in kleinen Portionen (in Quanten) abgeben oder aufnehmen kann. Als er diese Theorie 1900 erstmals der Fachwelt vorstellte, erkannten weder er noch andere Wissenschaftler seiner Zeit die Tragweite dieser Theorie. Fünf Jahre später griff Albert Einstein diese Idee auf und entwickelte seine Lichtquantenhypothese, u.a. zur Erklärung des photoelektrischen Effekts.

2.2 Laser-Materie Wechselwirkung

Die Physik von Materie in starken Laserfeldern hat sich seit 1960 zu einem eigenständigen, rasch anwachsenden Gebiet im Bereich der Atom- und Molekülphysik entwickelt. Möglich wurde dies durch die enormen Fortschritte in der Entwicklung von Lasersystemen mit hohen Pulsintensitäten und Repetitionsraten. In den ersten Experimenten, wie z.B. in der Spektroskopie von Atomen, konnte das Laserlicht stets als kleine Störung des atomaren Systems behandelt werden. Bei den heute erreichbaren Intensitäten von bis zu $10^{20} W/cm^2$ ist das Laserfeld jedoch erheblich stärker als das Feld auf einer Bohrschen Bahn im Wasserstoffatom und hat einen nicht mehr zu vernachlässigbaren Einfluss auf die Dynamik der Elektronen und des Kerns.

2.2.1 Laser

Um diese hohen Intensitäten erzeugen zu können, bestehen die heutigen Laser aus einem Oszillator und einem Verstärkersystem. Das Ziel dabei ist, möglichst viel Energie in möglichst kurze Pulse zu fokussieren.

Oszillator

Jeder Oszillator besteht aus drei Grundelementen:

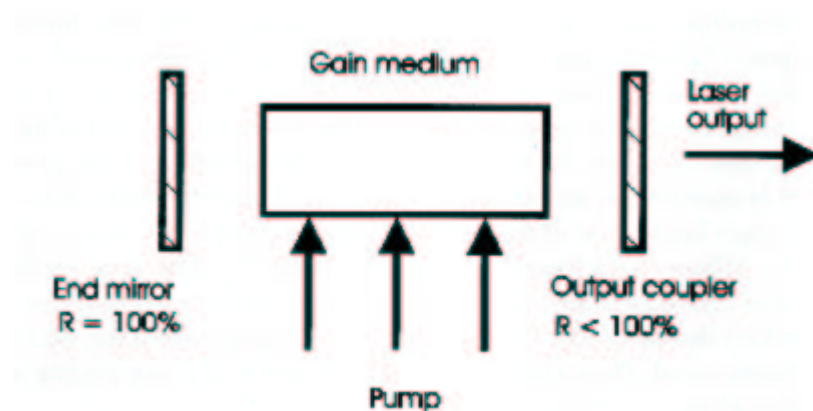


Abb. 2.1. Schematische Darstellung eines Laseraufbaus [46].

1. Ein Verstärkermedium, in dem eine Inversionspopulation auf- und durch stimulierte Emission wieder abgebaut werden kann.
2. Der Pump-Prozess sorgt für den Aufbau des angeregten Zustandes in dem Verstärkermedium.
3. Ein Resonator, in dem sich die stehende Welle („longitudinale Mode“) ausbilden kann.

Kurze Pulse lassen sich primär durch zwei Varianten erzeugen: Q-Switching (10-100ns Pulse) und Mode-locking (100ps - fs Pulse). Während man beim Q-Switching den ganzen Resonator ein- und ausschalten muss, benutzt man beim Mode-locking den Zusammenschluss von vielen longitudinalen Moden zu einer festen Phase. Um die Moden zusammenzuschalten, wird entweder ein optisch-akustischer Modulator oder ein „saturable absorber“ benutzt. Da auch diese externen Schalter noch relativ langsam sind, nutzt man bei den heutigen Titan:Saphir Lasern den internen, nichtlinearen Brechungsindex des Verstärkermediums („Kerr-lens mode-locking“).

Verstärker

Die aus dem Oszillator kommende Energie pro Puls liegt im Bereich von $10^{-9} J$ und muss um einen Faktor von 10^8 verstärkt werden. Um dies zu gewährleisten, sollte der Verstärker einen großen Frequenzbereich abdecken und möglichst nahe der Sättigung arbeiten. In diesem Sinne wird der Puls zuerst durch ein Dispersions-System (z.B. zwei Gitter) im Frequenzraum gestreckt und somit die Pulsintensität verringert. Diesen Puls schickt man in ein weiteres Verstärkermedium (meistens das gleiche wie im Oszillator) und erhöht somit sicher die Energie. Am Ende wird der verstärkte Puls wieder durch ein - nun inverses - Dispersions-System geschickt, um die ursprüngliche Pulslänge wieder herzustellen. Dieses System („chirped Pulse Amplification“, siehe Abb.2.2 aus [46]) kann, theoretisch gesehen, beliebig oft durchlaufen werden. Je höher die Intensität wird,

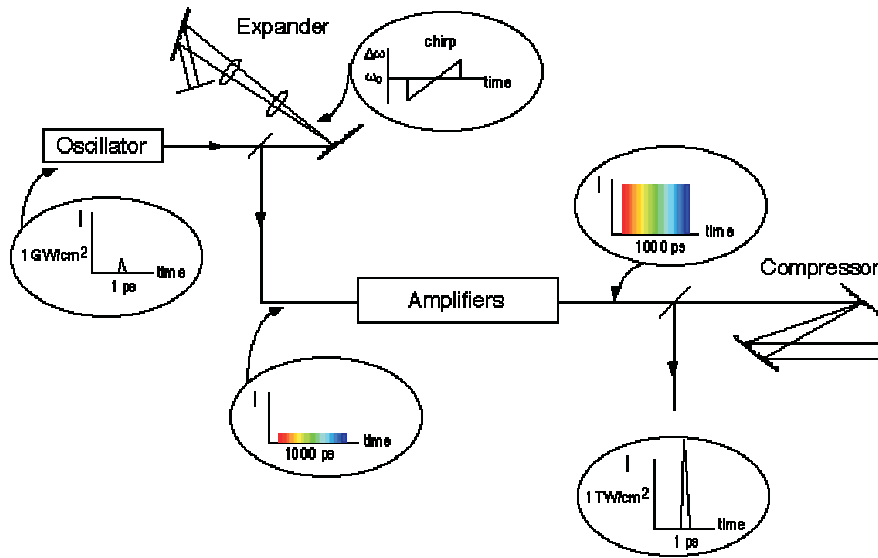


Abb. 2.2. Chirped Pulse Amplification [59]

desto schwieriger sind die Anforderungen an die Materialien zu erfüllen, so dass bei sehr hohen Intensitäten nichtlineare Effekte den Puls auch wieder zerstören können.

2.2.2 Atome in starken Laserfeldern: Wichtige Phänomene

Durch die vergleichbaren Feldstärken von Coulomb- und Laserfeld zeigen sich neue interessante Effekte wie die Erzeugung höher Harmonischer [3, 4], ATI-Peaks [5] und nichtsequentielle Mehrfachionisation [6, 7]. Diese Arbeit wird sich hauptsächlich auf den zuletzt genannten Effekt beschränken.

Rescattering-Modell

Einen grossen Schritt zu dessen Verständnis stellt die Formulierung eines quasi-statistischen 3-Stufen Modells [8] dar (Die „Richtigkeit“ dieses Modells wird erst im Abschnitt 3.5.1 gezeigt. Zum besseren Verständnis und für einen Überblick wird allerdings schon hier davon ausgegangen!). Der Hauptpunkt dabei ist, dass nach einer Ionisation eines Atoms das System Ion und Elektron nicht sofort als getrennt betrachtet wird. Es besteht vielmehr die Möglichkeit, dass das Elektron vom Laserfeld zurück zum Atom getrieben wird und mit diesem wechselwirken kann. Dieses „Simple Man’s Model“ oder „Rescattering-Modell“ lässt sich unterteilen in 3 Schritte(siehe Abb.2.3):

- Im ersten Schritt verlässt ein Elektron mit Impuls Null zu einem Zeitpunkt t_0 das atomare Bindungspotential, indem es durch die von Laserfeld und atomare Feld gebildete Potentialschwelle tunnelt.

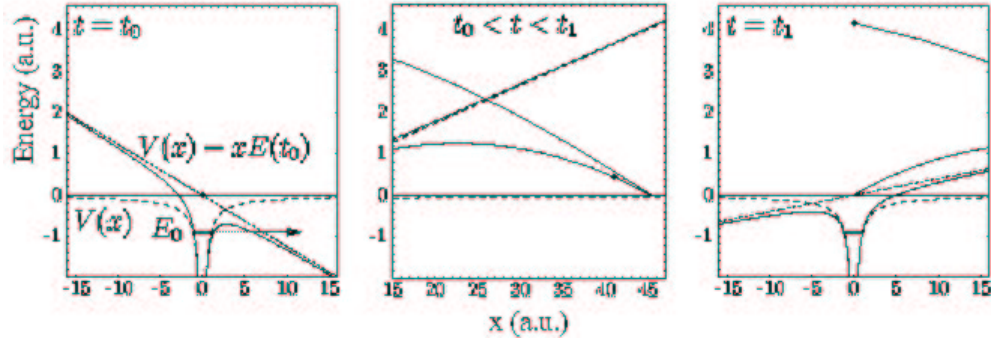


Abb. 2.3. Simple Man's Model [16]

- Für ein ionisiertes Elektron ist das atomare Potential in der unmittelbaren Umgebung des Ions gegenüber dem elektrischen Feld des Lasers vernachlässigbar klein. Die Dynamik des Elektrons wird somit nur durch das Laserfeld bestimmt und kann klassisch berechnet werden.
- Ein so modelliertes Elektron kann mit großer kinetischer Energie wieder zurück zum Ion gelangen und mit diesem auf vielfältige Art wechselwirken.

So besteht u.a. die Möglichkeit, dass das zurückkehrende Elektron unter Emission eines Photons wieder in den Grundzustand des Atoms gelangt. Die Photonenenergie ergibt sich dabei aus der Energiedifferenz zwischen aufgenommener kinetischer Energie im Laserfeld und der Bindungsenergie des Grundzustandes zu maximal $|E_0| + 3.17U_p$ (siehe Gl.2.6).

Andere Wechselwirkungsmöglichkeiten zwischen dem zurückkehrenden Elektron und dem Ion sind die elastische oder inelastische Streuung. Erstere führt zu hohen Driftimpulsen, letztere kann für ausreichend hohe kinetische Energie zur Ionisation eines weiteren Elektrons führen.

Teilchen im Laserfeld

Eine quantenmechanische Formulierung der in starken Laserfeldern auftretenden Effekte erweist sich als recht schwierig, da sie sich nicht störungstheoretisch beschreiben lassen.

Eine andere Möglichkeit besteht in der Formulierung von Modellen mit drastischen Approximationen. Ein auf Keldysh 1964 [9] bzw. auf die adiabatische Approximation in der Quantenmechanik [10] zurückreichender Ansatz erlaubt eine einfache quantenmechanische Beschreibung der Atome in starken Laserfeldern. Dieser begründet sich durch zwei Hauptargumente:

- Die atomare Dynamik eines Elektrons ohne Laserfeld ist bekannt.
- Die Gleichung der Propagation eines Elektrons allein im Laserfeld ist lösbar.

Lässt sich nun die Dynamik eines Elektrons in Zeitintervalle aufteilen, in denen entweder nur das Coulombpotential oder das Laserfeld die Bewegung be-

stimmt, so ist dieser Ansatz gerechtfertigt. Für die direkte Ionisation aus dem Grundzustand wurde ein derartiges Matricelement zuerst von Keldysh, Faisal und Reiss abgeleitet und später von Lewenstein durch die Sattelpunktsapproximation ausgewertet [11]. Dieses KFR-Matricelement lässt sich, analog zu den Pfadintegralen der Feynmangraphen, als Summe über die Beiträge einzelner Quantentrajektorien darstellen [12, 13].

Doch allein die klassische Betrachtung eines Elektrons im Laserfeld ergibt Aussagen u.a. über die Energie bzw den Impuls des rückkehrenden Elektrons:

Das Elektron gelange zu einem Zeitpunkt t_1 in das Laserfeld. Die Feldstärke $E := E_0 \cos \omega t$ wird als nur zeitabhängig angenommen (Dipolapproximation). Die Newtonsche Bewegungsgleichung ist damit gegeben durch

$$m\ddot{r}(t) = -e\partial_t A(t) = eE \quad (2.1)$$

mit dem Vektorpotential

$$A(t) = - \int dt E(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin \omega t \quad (2.2)$$

Die Geschwindigkeit des Elektrons für $t > t_i$ ergibt sich mit der Anfangsbedingung $\dot{r}(t_i) = v_i$ zu

$$\dot{r}(t) = -\frac{e}{m}[A(t) - A(t_i)] + v_i \quad (2.3)$$

Durch eine Zeitmittelung über die Periode T des Laserfeldes ergibt sich daraus der Driftimpuls p des Elektrons zu

$$p = m \langle \dot{r}(t) \rangle_T = eA(t_i) + mv_i. \quad (2.4)$$

Die gesamte kinetische Energie im Zeitmittel

$$\frac{m}{2} \langle \dot{r}^2(t) \rangle_T = \frac{p^2}{2m} + \frac{e^2 \langle A^2(t) \rangle_T}{2m} \quad (2.5)$$

besteht also aus einer Driftenergie und einer Oszillationsenergie (sog. ponderomotorischen Energie)

$$U_p = \frac{e^2 \langle A^2(t) \rangle_T}{2m} = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad (2.6)$$

Nimmt man nun an, dass die Geschwindigkeit des Elektrons beim Verlassen des Atoms Null ist, so ist der Driftimpuls durch das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation bestimmt

$$p = eA(t_i) \quad (2.7)$$

mit der Driftenergie

$$\frac{p^2}{2m} = \frac{e^2 A^2(t_i)}{2m}. \quad (2.8)$$

Für ein monochromatisches linear polarisiertes Laserfeld mit $A(t) = A_0 \cos \omega t$ ergibt sich eine Driftenergie von

$$\frac{p^2}{2m} = \frac{e^2 A_0^2 \cos^2 \omega t_i}{2m} \leq \frac{e^2 A_0^2}{2m} = 2U_p. \quad (2.9)$$

Eine grobe Orientierung, ob die Ionisation verglichen mit der Oszillation des Laserfeldes schnell abläuft, ergibt sich durch den Adiabazitäts- oder Keldysh-parameter [9]

$$\gamma = \sqrt{\frac{|I_p|}{2U_p}} \quad (2.10)$$

mit I_p als Bindungsenergie im Atom. Es unterscheiden sich folgende Fälle:

- $\gamma \ll 1$: Tunnelionisation
- $\gamma \gg 1$: Multiphotonionisation.

Für sehr hohe Felder mit ausreichend langer Periodendauer ist das atomare Potential soweit abgesenkt, dass sich das Elektron sogar ohne Tunneln aus dem Bindungszustand lösen kann („Over the barrier Ionisation“).

2.3 ATI-Peaks

Ist das Ionisationspotential I_p eines Elektrons größer als die Energie eines Photons, so kann der Ionisationsprozess nur durch die Absorption mehrerer Elektronen stattfinden. Dieser als Multiphotonionisation bezeichnete Prozess ist für niedrige Intensitäten durch ein Potenzgesetz beschreibbar:

$$(I/I_0)^n \quad (2.11)$$

mit

$$(n-1)\hbar\omega < I_p < n\hbar\omega. \quad (2.12)$$

Agostini zeigte 1979 in energieaufgelösten Experimenten, dass ein Elektron auch mehr als die minimal notwendige Anzahl von Photonen absorbieren kann („Above Threshold Ionisation“). Ein ATI-Spektrum besteht demzufolge aus einzelnen Peaks im Abstand $\hbar\omega$ bei Energien von $n\hbar\omega - I_p$.

Alle Arbeiten bis 1993 beziehen sich auf den direkten Teil des ATI-Spektrums. Die Ionisation findet dabei entweder aus dem Grundzustand oder über angeregte Zustände (Freeman Resonanzen) des Atoms statt [14]. Dabei hat das Elektron nach der Ionisation keine weitere Wechselwirkung mehr mit dem zurückbleibenden Kern. Erst durch Erreichen von höheren Laserintensitäten und Repetitionsraten wurden weitere Peaks im hochenergetischen Teil des Spektrums sichtbar: Es bildet sich ein Plateau mit anschließendem Cutoff bei $10U_p$ heraus (Fig2.4). Dabei nehmen die Elektronen - wie im Rückstreumodell beschrieben - im Laserfeld Energie auf und werden zurück zum Kern beschleunigt, mit dem sie elastisch oder inelastisch streuen.

Die maximale Driftenergie von $10U_p$ ergibt sich, abgesehen von dem elastischen Stoß, nur aus der Bewegung des Elektrons im Laserfeld. Ausgehend von den Anfangsbedingungen $v(t_0) = 0$, $r(t_0) = 0$ und einem linear polarisierten Laserfeld $A(t) = A(t)\hat{e}$ mit der Polarisationsrichtung \hat{e} und der Frequenz ω erhält man die graphische Darstellung in Fig.2.5 über die möglichen Start- und

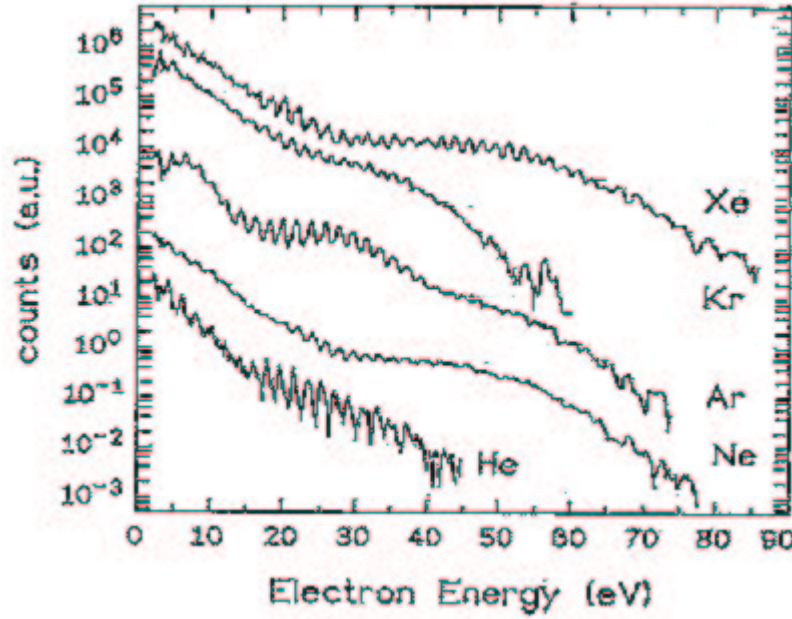


Abb. 2.4. Experimentell bestimmte Spektren von Paulus et al. [15] bei einer Laserintensität von $2 - 3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ mit einer Wellenlänge von 630nm und einer Pulslänge von 40fs.

Rückkehrzeiten durch die Betrachtung des elektronischen Driftimpulses k aus der zweiten Sattelpunktsgleichung

$$k = \frac{1}{t_1 - t_0} \int_{t_0}^{t_1} d\tau \cdot eA(\tau)\hat{e} \quad (2.13)$$

Der Rückkehrzeitpunkt t_1 eines Teilchens ist durch den Schnittpunkt einer zur Startzeit t_0 an die Funktion $\alpha(t)$ angelegten Tangente gegeben. In einem monochromatischen Laserfeld der Frequenz ω ergibt sich die kinetische Energie als Funktion der Flugzeit $\tau = \omega(t_1 - t_0)$ [17] zu

$$E_{back}(\tau) = \frac{2(2 - 2\cos\tau - \tau\sin\tau)^2}{2 + \tau^2 - 2\cos\tau - 2\tau\sin\tau} U_p \quad (2.14)$$

Die graphische Darstellung der Gl.(2.13) in Fig.(2.6) weist mehrere Maxima auf. Das absolute Maximum ist $3.17U_p$ bei $\tau = 4.08$. Geht das Elektron zu diesem Zeitpunkt in den Grundzustand des Atoms zurück, wird ein Photon mit der maximalen Energie von $3.17U_p + E_0$ emittiert. Wird allerdings das zurückkehrende Elektron am Kern elastisch gestreut, so ergibt sich für die Driftenergie ein Unterschied in Vor- und Rückwärtsstreuung zu

$$\frac{p^2}{2m} = U_p \times \left\{ \begin{array}{l} \frac{2(3-3\cos\tau-2\tau\sin\tau)^2}{2+\tau^2-2\cos\tau-2\tau\sin\tau} \Rightarrow \text{Rueckstreuung} \\ \frac{2(1-\cos\tau)^2}{2+\tau^2-2\cos\tau-2\tau\sin\tau} \Rightarrow \text{Vorwaertsstreuung} \end{array} \right\} \quad (2.15)$$

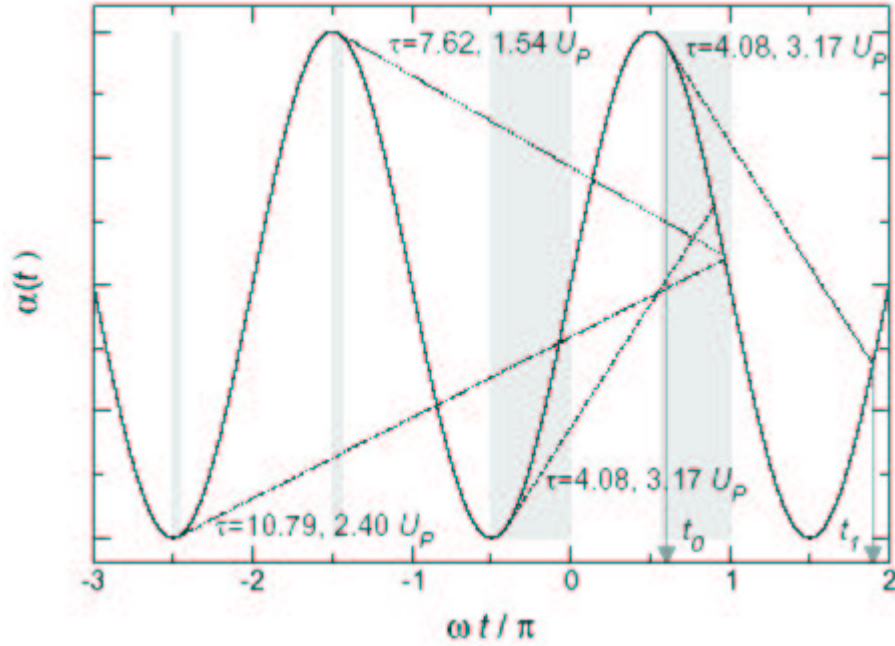


Abb. 2.5. Mögliche Startzeiten t_0 und Rückkehrzeiten t_1 [16]: Die Tangenten an $\alpha(t) = \frac{e}{m} \int dt A(t)$ kennzeichnen ein Maximum an Rückkehrenergie. Das Intervall möglicher Rückkehrzeiten ist durch $0 < \omega t_1 < 2\pi$ festgelegt. Die daraus möglichen Startzeiten liegen in den grau unterlegten Intervallen.

Driftenergien von $2U_p$ bis $10U_p$ mit einem Streuwinkel von 0 bis π sind so nur über die Rückstreuung möglich. Den größten Impuls erhält das Elektron dabei, wenn es in die gleiche Richtung beschleunigt wird, in die auch der Startimpuls zeigt.

2.4 High Harmonic Generation

Gemäß dem „Simple Man’s Model“ tunnelt das erste Elektron durch die von Coulomb- und Laserfeld geformte Potentialbarriere. Im Laserfeld bewegt es sich wie ein freies Teilchen und kann Energie aufnehmen. Wird das Elektron zurück zum Kern beschleunigt und rekombiniert in den Grundzustand, so wird ein hoch-energetisches Photon mit einem Vielfachen der Grundfrequenz („Fundamentale“) emittiert. In einem atomaren Gas erhält man aus Paritätsgründen ein Spektrum mit ausschließlich ungeraden Vielfachen bis in den Röntgenbereich. Jede Absorption und Emission eines Photons aus dem Laserfeld ist proportional zu dessen Amplitude E , so dass sich für die Wahrscheinlichkeit der Emission höher Harmonischer ein Potenzgesetz $P \propto (I/I_0)^n$ ergibt. Das Spektrum sollte demnach mit zunehmender Intensität schnell abfallen. Experimentell findet man jedoch - wie bei den ATI-Peaks - eine Plateaustruktur mit anschließendem Cutoff (siehe Fig.2.7).

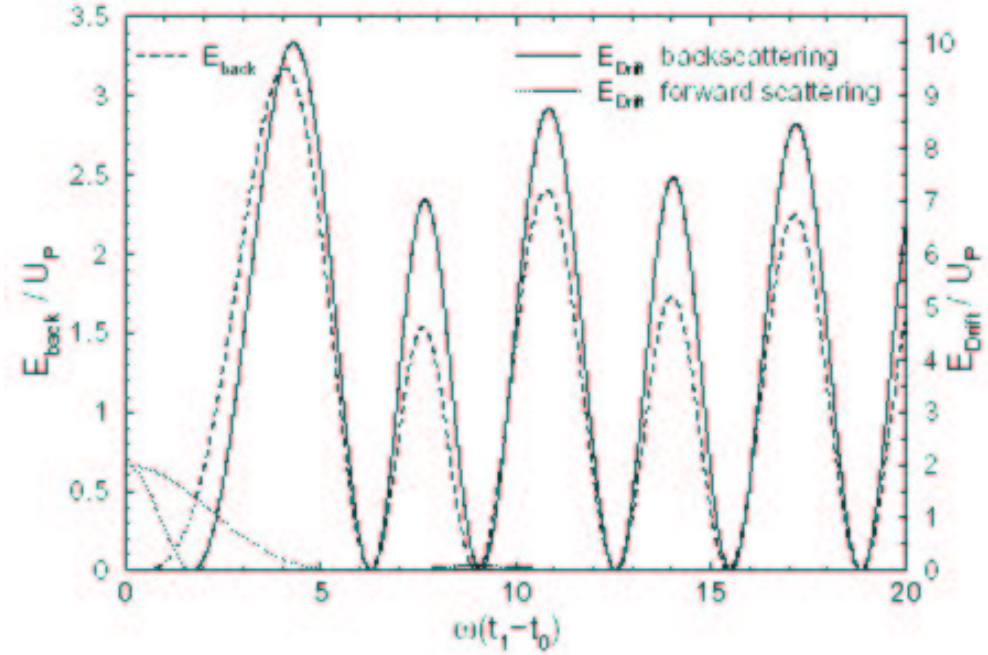


Abb. 2.6. Als Funktion der Flugzeit ist hier die kinetische Energie zum Zeitpunkt der Rückkehr (gestrichelte Linie, siehe Gl.(2.13)), sowie die Driftenergie nach einer Rückstreuung (durchgezogene Linie) und nach einer Vorwärtsstreuung (gepunktete Linie) aufgetragen.

Die in einem Gastarget erzeugten höheren Harmonischen sind durch die Anwesenheit des Laserfeldes im Vergleich zur Fundamentalen in der Phase verschoben. Diese Phasenverschiebung entspricht genau einem durch ein elektromagnetisches Feld induzierten Dipolmoment im Atom. Quantenmechanische Rechnungen zeigen [18], dass sich das zeit- und intensitätsabhängige Dipolmoment (dessen Fouriertransformierte die Harmonische ergibt) zusammensetzt aus den jeweiligen Beiträgen der einzelnen Elektronentrajektorien im Laserfeld. Nach dieser Erkenntnis stellte sich schnell die Frage, ob die Harmonischen in einer festen Phasenbeziehung zueinander stehen und man, analog zum mode-locking, kurze Pulse im Attosekundenbereich daraus selektieren kann. Damit wäre es erstmals möglich, die Dynamik von Elektronen und Molekülen in Echtzeit zu untersuchen. Das größte Problem stellt allerdings nicht die Erzeugung der kurzen Pulse dar, sondern vielmehr die Kontrolle und Messung zum Nachweis ihrer Existenz. Erst vor einem Jahr gelang der Nachweis von Laserpulsen im Attosekunden-Bereich [19].

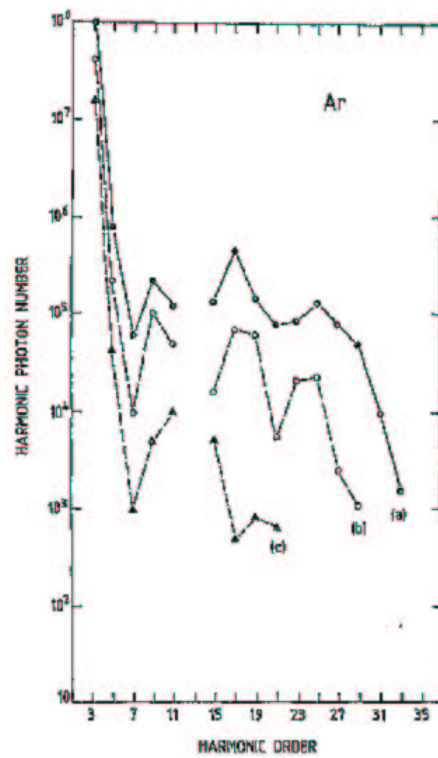


Abb. 2.7. Das Spektrum zeigt höher Harmonische von Argon bei Laserintensitäten von a) $3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, b) $2.2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und c) $1.6 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ aus [4]. Bis zur 7ten Harmonischen zeigt sich der Abfall des Potenzgesetzes, im darauffolgenden Plateau bleibt die Anzahl der Photonen unabhängig von der Ordnung mit zunehmender Intensität weitgehend gleich. Aus nicht ersichtlichen Gründen konnte bei diesem Experiment die 13te Harmonische nicht nachgewiesen werden.

2.5 Nicht-sequentielle Doppelionisation

Die Einfachionisation ist mit dem „single active electron“ (SAE) Modell quantitativ recht gut verstanden und zeigt eine back-to-back Emission von Elektron und Ion. In vielen Fällen lässt sich auch die Doppelionisation durch ein aktives Elektron in einem effektiven Potential beschreiben, vorausgesetzt sie verläuft sequentiell. Für die Ionisation des neutralen Atoms oder des jeweiligen Ions sind dann voneinander unabhängige Raten angebar. Experimentelle Arbeiten von Huillier et al. [20], Fittinghoff et al. [7] und Walker et al. [21] zeigten jedoch, dass in einem bestimmten Intensitätsbereich ein weiterer, nicht-sequentieller Mechanismus eine große Rolle spielt. In Fig.2.8 sind die Ionisationsraten als Funktion der Intensität aufgetragen. Eine Abweichung von der sequentiellen Ionisation um viele Größenordnungen ist durch eine ausgeprägte Knie-Struktur zu erkennen.

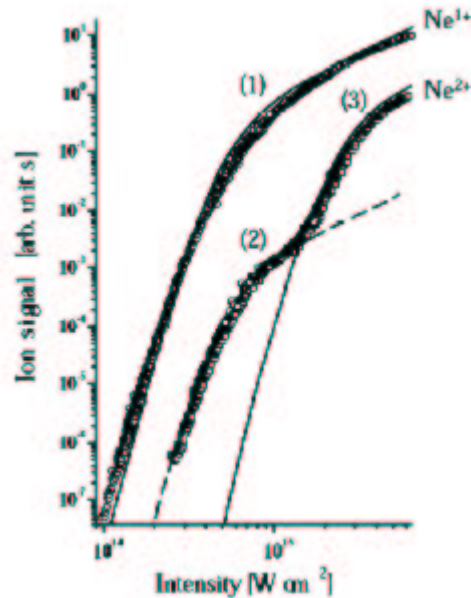


Abb. 2.8. Gemessene Einfach- und Doppelionisation von Neon bei linearer Polarisati-on und einer Pulsdauer von 25fs bei einer Wellenlänge von 800nm [22]. Die durchgezogene Linie gibt die berechneten Ionensignale allein für die sequen-tielle Doppelionisation an. Die gemessenen Ne^{2+} Signale weichen um viele Größenordnungen von der Annahme eines sequentiellen Mechanismusses ab. Die dazugehörigen Impulsverteilungen zeigt Fig.2.10.

Die Frage nach dem Mechanismus dieser erhöhten Doppelionisation wurde seit-dem heftig diskutiert. Die möglichen Prozesse seien hier kurz vorgestellt:

- Im „Two Step One“ (TS1)-Bild absorbiert nur das erste Elektron Pho-tonen aus dem Laserfeld und wird ionisiert. Auf seinem Weg durch die Atomhülle kollidiert es mit einem noch gebundenen Elektron, überträgt

einen Teil seiner Energie und ionisiert so in einem $(e,2e)$ -Stoß das zweite Elektron.

- Das „Shake-Off“ Modell geht bei der Doppelionisation von Photonen aus, deren Energie größer als die Doppelionisationsschwelle ist. Nach der Absorption des Photons wird zunächst nur ein Elektron photoionisiert. Dieses entfernt sich nun so schnell vom Ionenrumpf, dass sich das verbleibende Elektron nicht adiabatisch an das ionische Potential anpassen kann und ins Kontinuum *geschüttelt* wird.
- Das „Collective Tunneling Ionisation“ Modell wurde von Eichmann et al. [23] entwickelt und beschreibt die nichtsequentielle Ionisation als einen kollektiven Tunnelprozess von zwei Elektronen. Numerische Rechnungen zeigen, dass dies für Elektronen möglich ist, die sich im dynamischen Gleichgewicht etwa im gleichen Abstand vom Kern befinden. Sobald die Elektronen jedoch unterschiedliche Abstände zum Kern einnehmen, kommt es zu einem sofortigen Wiedereinfang eines der Elektronen.
- Der zuerst von Kuchiev [24] und später von Corkum [8] vorgeschlagene inelastische Streumechanismus ist eine Abwandlung des „Two-Step-1“-Bildes, induziert durch die Oszillation des Laserfeldes. Das erste Elektron tunnelt durch die Potentialbarriere, nimmt im Laserfeld Energie auf, wird schließlich zurück zum Mutteratom beschleunigt und kann weitere Elektronen freisetzen. Die Bedingung für die Rückkehr des Elektrons wie z.B. die kinetische Energie hängen von der Phase der Lichtwelle zum Startzeitpunkt und der Amplitude des elektrischen Feldes ab.

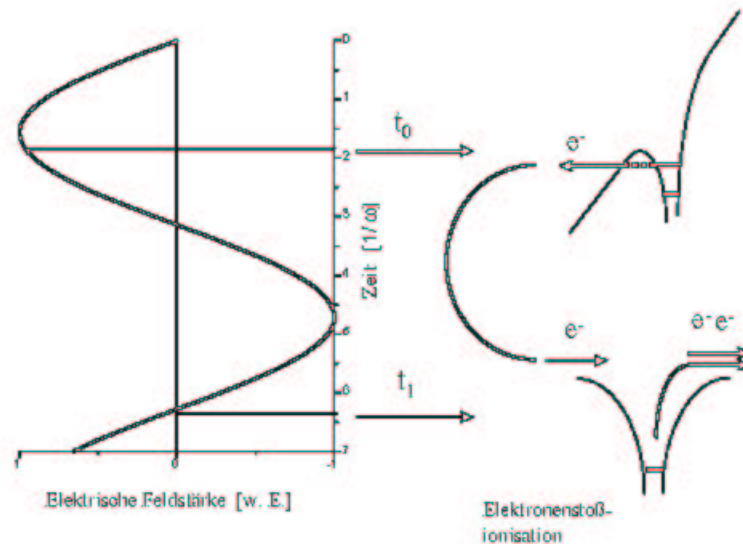


Abb. 2.9. Schematische Darstellung des Rescattering-Prozesses [47].

Eine Entscheidung über den tatsächlichen Mechanismus nur anhand der totalen Ionisationsraten in Abhängigkeit von der Intensität zu fällen, ist sehr schwer.

Allein das kollektive Tunneln zeigt zu kleine Ionisationsraten. In Kontrast zu den ersten beiden vorgeschlagenen Modellen zeigt das Rescattering-Modell jedoch eine Zeitdifferenz zwischen den beiden freigesetzten Elektronen. Zusätzlich würde das Elektron bei zirkularem und elliptischem Licht nicht zurück zum Kern beschleunigt werden können, so dass sich eine weitere Abhängigkeit der nicht-sequentielle Doppelionisationsrate von der Elliptizität des Laserlichtes zeigen sollte. Die Informationen müssen also aus dem Experiment kommen:

2.5.1 Recoil-Impulse

Zeitlicher Ablauf

Der Recoilimpuls zeigt wichtige Informationen über den zeitlichen Ablauf des Ionisationsprozesses. Der Impuls des doppelt geladenen Ions ist gegeben durch

$$p_z(t_\infty) = \int_{t_1}^{t_{12}} E(t) \sin \omega t dt + 2 \int_{t_{12}}^{t_\infty} E(t) \sin \omega t dt. \quad (2.16)$$

wobei das erste Elektron zur Zeit t_1 und das zweite Elektron zur Zeit t_{12} freigesetzt wird. Weiter nimmt man an, dass es keinen Impulsübertrag zwischen dem zurückkehrenden Elektron und dem Ion gibt, so dass die Phase des elektrischen Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation im Ionimpuls gespeichert ist.

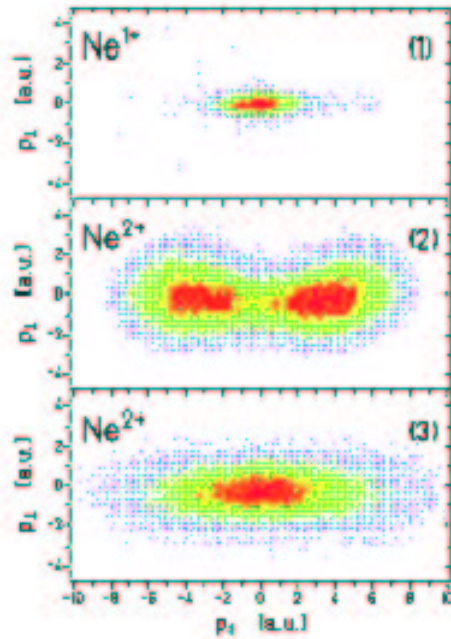


Abb. 2.10. Gemessene Recoil-Impulsverteilungen bei verschiedenen Intensitäten (zugehöriges Bild von Abb.2.8)[22].

Für das kollektive Tunneln, den Shake-Off- und TSI-Prozess lässt sich im Hin-

blick auf den zeitlichen Ablauf gemeinsam argumentieren: Die größte Wahrscheinlichkeit für beide Prozesse liegt in den Maxima der oszillierenden Lichtwelle. Das zweite Elektron würde, im Vergleich zur Periode des Laserfeldes, „instantan“ mit dem ersten Elektron das Atom verlassen, ergo $t_1 = t_{12}$. Damit zeigt sich, dass in beiden Modellen die Photoelektronen bei maximalem Feld erzeugt werden. Der anschließend auf die Elektronen und das mehrfach geladene Ion durch das Feld übertragene Impuls ist vernachlässigbar. Die daraus resultierende Impulsverteilung sollte wie bei der Einfachionisation ein Maximum bei Null aufweisen.

Der zeitliche Ablauf des Rückstreumechanismus ist von der Laserintensität abhängig: Für niedrige Intensitäten ist die kinetische Energie des zurückkommenen Elektrons kleiner als die Ionisationsschwelle für das nächste gebundene Elektron. Im nichtsequentiellen Bereich sollten sich aufgrund der unterschiedlichen Ionisationszeiten für erstes und zweites Elektron zwei deutlich voneinander separierte Maxima in Richtung der Laserpolarisation ausbilden. Erhöht man weiter die Intensität, sollten sich die Maxima zu höheren Impulsen hin verschieben und die Linien sich verbreitern. Bei noch höherer Laserintensität gelangt man wieder in den sequentiellen Ast der Doppelionisation und die Impulsverteilung sollte ähnlich zur Einfachionisation eine Verteilung mit einem Maximum bei Null ergeben.

Fig.2.10 zeigt gemessene Ionenimpulse von Neon bei 800nm und 25fs Laserpulsen. Die Impulsverteilung für einfach geladene Ionen (Teil 1)) zeigt eine Verteilung mit einem Maximum am Ursprung, entsprechend dem wahrscheinlichsten Tunneln beim höchsten Feld. Dagegen hängt die Verteilung für zweifach geladene Ionen stark von der Intensität ab: Im nicht-sequentiellen Bereich zeigt der Ionenimpuls eine ausgeprägte Doppelpeak-Struktur (Teil 2). Bei noch höheren Intensitäten geht die Doppelionisation bereits wieder in den sequentiellen Ast über und es zeigt sich eine ähnliche Verteilung wie bei der Einfachionisation (Teil 3).

Gerechnete Verteilungen der Neonionen im nicht-sequentiellen Bereich zeigt Fig.2.11 [16]. Dabei geht das Atom nur über die Werte seiner ersten und zweiten Ionisationsenergien ein und es wird bei der Rückkehr des ersten Elektrons von einer Kontakt-Wechselwirkung ausgegangen. Die Übereinstimmung ist vor allem in Richtung der Laserpolarisation sehr gut. Senkrecht dazu fallen allerdings die experimentellen Daten schneller ab als die Ergebnisse der Modellrechnung; ein Grund dafür könnte die fehlende Wechselwirkung in dieser Ebene sein.

Gemessene wie gerechnete Verteilungen entsprechen qualitativ den Vorhersagen des Rückstreumodells und verifizieren so deutlich diesen Prozess als den dominanten Mechanismus der nicht-sequentiellen Doppelionisation. Auch die zu erwartende starke Abhängigkeit der Rate doppelt geladener Ionen von der Elliptizität wurde in [1, 2] beobachtet.

Doppelpeak-Struktur

Auch für andere Gase wurden die Impulsverteilungen in Abhängigkeit von der Intensität untersucht [25, 26, 27]. Im Unterschied zu Neon zeigen die Ionenim-

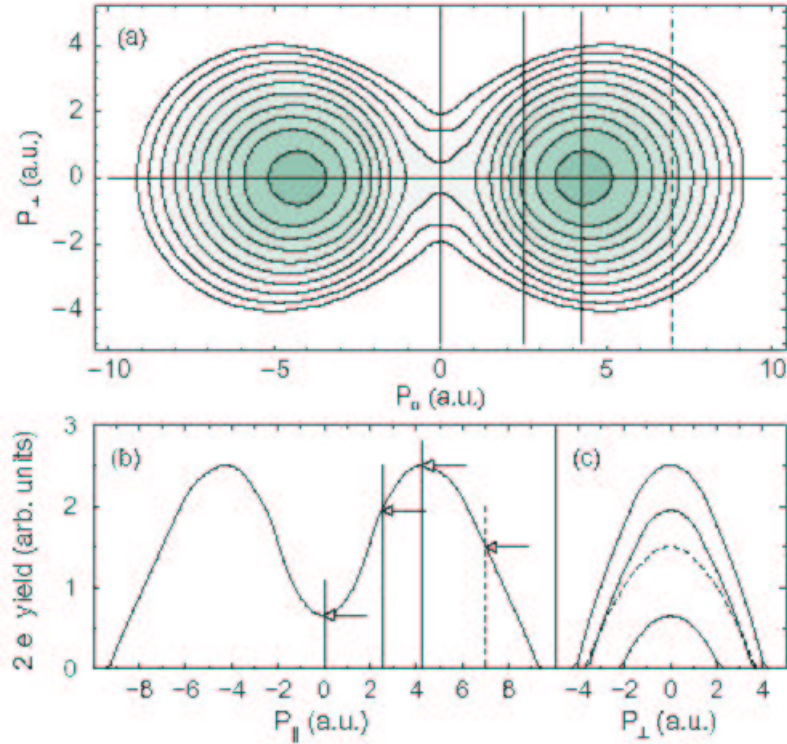


Abb. 2.11. Berechnete Summenimpulse für Neon bei einer Intensität von $8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Teil a) zeigt ein Dichteplot mit den in b) und c) gezeigten Schnitten entlang $p_{\perp} = 0$ und entlang einiger Werte von p_{\parallel} .

pulse für He^{2+} und Ar^{2+} keine so deutlich ausgeprägte Doppelpeak-Struktur (Fig.2.12).

Eine mögliche Erklärung ist das schon frühe Einsetzen der sequentiellen Doppelionisation ab $6.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Da diese Verteilung ihr Maximum am Ursprung aufweist, könnte sie schon früh das „Tal“ in der Mitte der Impulsverteilung auffüllen.

Es wurde ein weiterer, zusätzlicher Mechanismus diskutiert: Dabei kann das erste Elektron bei seiner Rückkehr eine Anregung des noch gebundenen Elektrons ermöglichen. Dieser Mechanismus wird im nächsten Abschnitt noch genauer untersucht werden.

2.5.2 Anregung

Von Peterson et al. [28] wurden ATI-Elektronen von nicht-sequentieller Doppelionisation mit den ATI-Elektronen der Einfachionisation verglichen. Das Experiment wurde mit Argonatomen und einem Lasersystem mit 60fs-Pulsen bei einer Intensität von $2.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ durchgeführt.

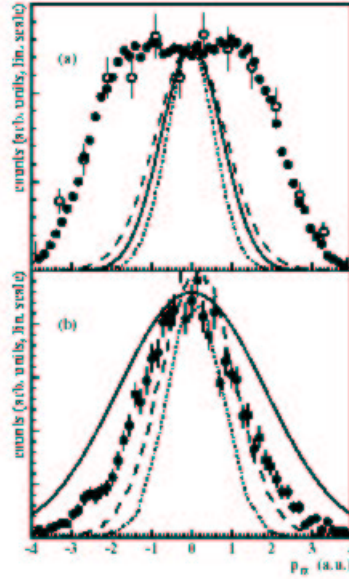


Abb. 2.12. Gemessene Ar^{2+} Impulsverteilungen (Kreise) parallel zur Polarisationsachse bei a) $3.75 \cdot 10^{14} W/cm^2$ und b) $12 \cdot 10^{14} W/cm^2$. Die Verteilungen sind integriert über die Richtungen senkrecht zur Polarisation. Als Vergleich sieht man die Ar^{1+} Impulsverteilungen (gestrichelte Linie).

In Fig.2.13 aufgetragen sind die ATI-Elektronen der Doppelionisation. Zu sehen ist eine breite Verteilung um 1.2 a.u., sowie ein scharfes Maximum bei Null. Innerhalb der Fehlerbalken lassen sich allerdings beide Peaks nicht sicher voneinander separieren. Zur Diskussion sei jetzt von zwei Peaks ausgegangen:

- Es sei angenommen, dass beide Elektronen bei ihrer Freisetzung aus dem Bindungspotential die Energie null besitzen. Der gemessene Impuls kommt so nur durch den Energietransfer aus dem Laserfeld, in Abhängigkeit von der Phase des Feldes bei der Rückkehr. Die durch das Rückstreumodell erwartete Energie liegt in einem schmalen Bereich um $2U_p$. Bei der hier vorliegenden Intensität entspricht dies genau einem Impuls von 1.5 a.u. und kann mit dem ersten Peak identifiziert werden.
- Elektronen mit Null Energie lassen sich durch einige *Erweiterungen* des Rückstreumodells erklären. Ist die kinetische Energie des rückkehrenden Elektrons kleiner als die Ionisationsenergie des Ions, so kann das zweite Elektron nicht ins Kontinuum gehoben werden. Dagegen benötigt die erste Anregungsstufe des Ions weit weniger Energie, so dass dieser Prozess wahrscheinlich wird. Das Ionisationspotential sinkt bei einem angeregten Argonion bis fast auf die Hälfte, so dass Feldionisation möglich wird. Am wahrscheinlichsten ist dies bei dem höchsten elektrischen Feld mit Phase null. Emittiert das Elektron bei Phase Null, so hat es keinen Driftimpuls.

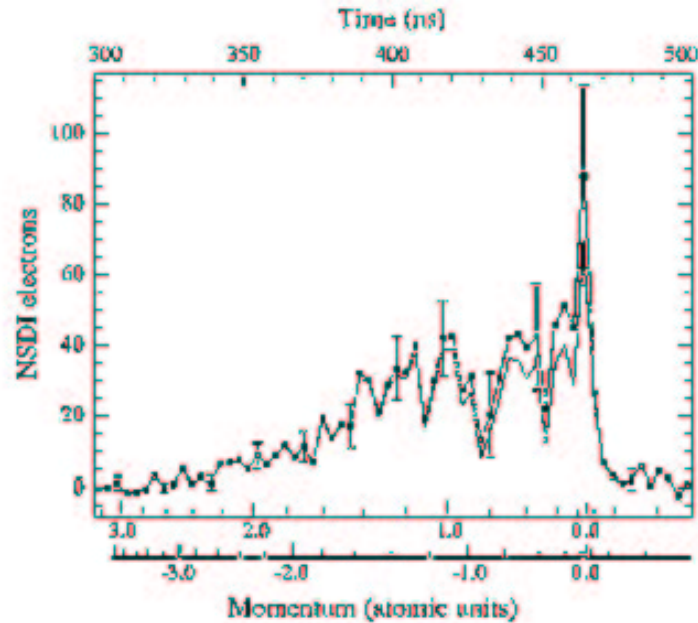


Abb. 2.13. Elektronen-Spektrum der nicht-sequentiellen Doppelionisation mit abgezogenem Untergrund [28]. Die Fehlerbalken und zwei Kurven zeigen die Unsicherheit der Daten an.

Ausgehend von der ADK Tunneltheorie zeigen Berechnungen für die Ionisation von angeregten Argonatomen ein Maximum bei Energie gleich Null (Fig.2.14).

Auch COLTRIMS-Messungen [2] mit Argon zeigen in den Recoil- und Elektronenimpulsverteilungen eine gewisse Anzahl an niederenergetischen Teilchen. Allerdings erkennt man hier keine scharfe Verteilung um Null (genauer siehe Abschnitt „Elektronen-Impulse“).

- Eine andere mögliche Erklärung für Elektronen mit kleineren Energien ist unter dem Begriff „*Coulomb-focusing*“ bekannt. Dabei trifft das zurückkehrende Elektron nicht direkt auf das Ion, sondern wird nur von dem Coulomb-Potential des Kerns eingefangen. Erst nach weiteren Laserzyklen kreuzt die Trajektorie des Elektrons das Ion. Die Energien der so erzeugten Elektronen hängen stark von der Phase des Laserfeldes bei der Kollision ab und können weit weniger Energie als $2U_p$ betragen.

Leider lassen sich hohe bzw niedrige Rückkehrenergien noch nicht einem Stoß bzw einer Anregung zuordnen, weitere Experimente sind hier notwendig. Diese Arbeit wird sich im Ergebnis-Teil noch weiter mit diesem Thema beschäftigen.

2.5.3 Elektronen-Impulse

Gemessene Elektronenenergien haben den Rückstreu-Prozess zwar bestätigt, liefern aber in dieser Hinsicht keine weiteren Informationen. Die verschiedenen

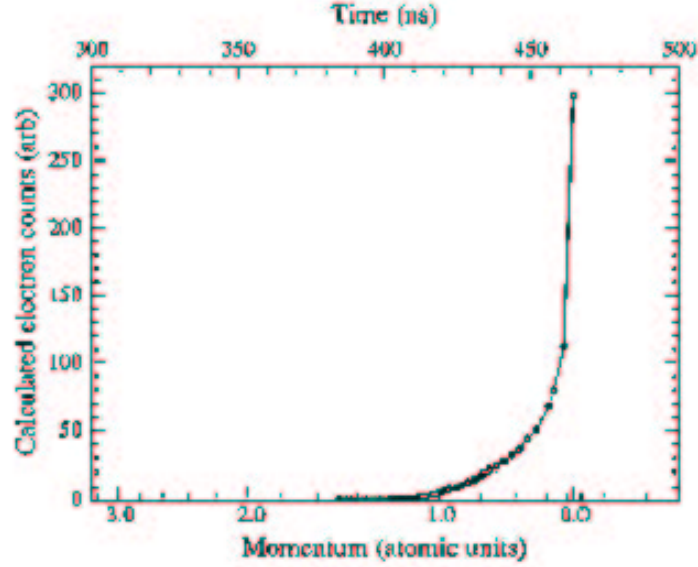


Abb. 2.14. Die mit Hilfe der ADK-Theorie berechneten Tunnelrate angeregter Ar^{1+} Ionen (aus [28]).

theoretischen Rechnungen unterscheiden sich allerdings sehr in der angenommenen Dynamik und Wechselwirkung zwischen den Elektronen in Anwesenheit eines starken Laserfeldes. Von einer exakten Beschreibung der nicht-sequentiellen Doppelionisation ist man noch weit entfernt. Ein erster Schritt in dieser Richtung sind die gemessenen Elektronen-Impulse. Dabei sind vollständig differentielle Daten aufgrund der schlechten Auflösung in Jetrichtung (besonders bei den Ionen) bis jetzt noch nicht vorhanden.

Bei der durch ein hochenergetischen Photon oder durch den Einfang eines schweren Ions ausgelösten Doppelionisation bestimmt die Coulomb-Abstoßung den Endzustand der beiden Elektronen: Die Teilchen werden bevorzugt in entgegengesetzte Richtungen emittiert [56].

Dagegen ist bei der Doppelionisation im Laserfeld der Einfluss des Feldes auch noch zu spüren, wenn beide Elektronen schon im Kontinuum sind. In Abb.2.15 sind die gemessenen Impulskomponenten beider Elektronen entlang der Polarisationsachse gezeigt [30]. Dabei zeigen Elektronen im ersten und dritten Quadranten, dass sie in die gleiche Hemisphäre und Elektronen im zweiten und vierten Quadrant in entgegengesetzte Halbkugeln emittiert werden. Zu sehen ist eine starke Korrelation zwischen den Elektronen, die am wahrscheinlichsten beide Teilchen mit gleichem Impuls in dieselbe Richtung schickt. Bei höheren Intensitäten, im Bereich der sequentiellen Doppelionisation geht diese Korrelation wieder verloren. Eine qualitative Erklärung ergibt sich durch den Rückstreu-Mechanismus: Das zurückkehrende Elektron verliert einen Teil seiner Energie, um das zweite Elektron über die Potentialbarriere zu heben. Die verbleibende Energie kann beliebig zwischen den beiden Elektronen aufgeteilt werden, der

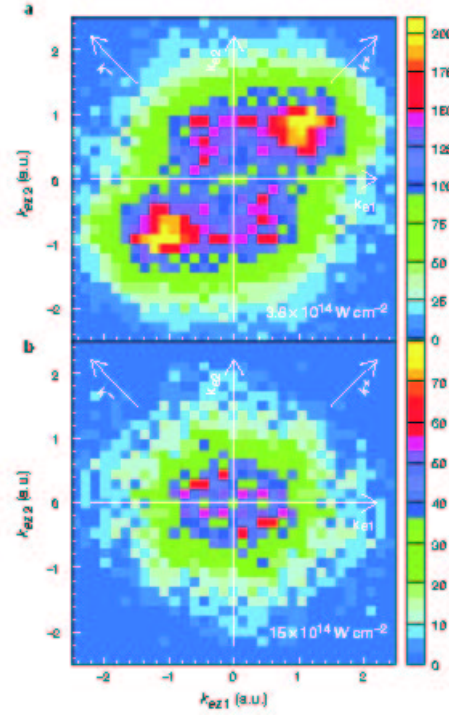


Abb. 2.15. Longitudinale Impulsverteilung beider Elektronen bei a) $3.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und b) $15 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Impulsvektor kann in alle Richtungen zeigen. Beide Elektronen sind zur gleichen Zeit am gleichen Ort und sehen deshalb den gleichen Gradienten des elektromagnetischen Feldes, der sie in die gleiche Richtung treibt. In Abhängigkeit von der Rückkehrenergie ergibt sich für die Elektronen ein klassisch erlaubter Bereich im Phasenraum (Abb.2.16).

Auch wenn die Rückkehrenergie kleiner als die Ionisationsschwelle des zweiten Elektrons ist, findet Doppelionisation statt. Das zurückkehrende Elektron gibt seine Energie an das Atom ab und erzeugt einen angeregten Zustand. Ob das zweite Elektron „gleich“ mit dem ersten Elektron das Atom durch Feldionisation verlässt oder noch einige Laserzyklen gebunden bleibt und dann erst emittiert wird, ist ungewiss. Feuerstein et al. [31] berechneten den zu erwartenden Phasenraum für ein zuerst angeregtes und später feldionisiertes Elektron (siehe Fig.2.16).

Bei weiteren Untersuchungen wurden die, zur Laserpolarisation longitudinalen Impulse der Elektronen in Abhängigkeit von den Transversalimpulsen untersucht [2, 29]. In Fig.2.17 zeigt sich eine starke Veränderung der Elektronenkorrelationen bei den unterschiedlichen transversalen Impulsen eines Elektrons von a) $p_{\perp} < 0.1 \text{ a.u.}$, b) $0.1 \text{ a.u.} < p_{\perp} < 0.2 \text{ a.u.}$, c) $0.2 \text{ a.u.} < p_{\perp} < 0.3 \text{ a.u.}$ und d) $0.3 \text{ a.u.} < p_{\perp} < 0.4 \text{ a.u.}$. Zur Diskussion werden hier Bild a) und Bild d)

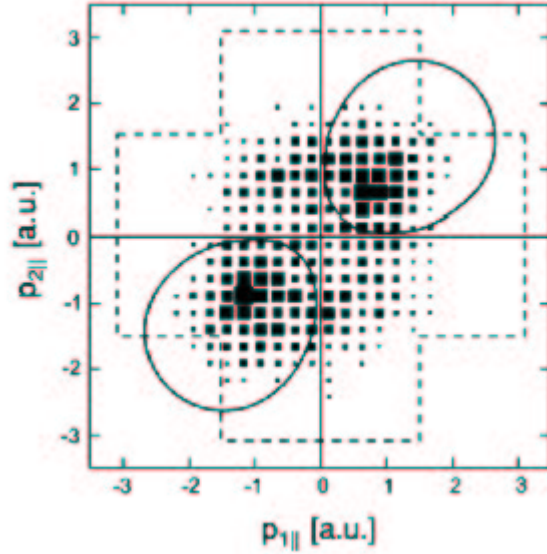


Abb. 2.16. Aufgetragen sind die longitudinale Impulse von Elektron1 gegenüber Elektron2 für Ar-Doppelionisation mit 25fs Laserpulsen und einer Intensität von $0.25PW/cm^2$. Die durchgezogene Linie zeigt den berechneten Phasenraum für (e,2e)-Prozess, die gestrichelte Linie den Bereich für den Anregungsprozess [31].

betrachtet:

- Bei kleinen transversalen Impulsen (Teilbild a) verändert sich die im gesamten Bild gesehene Korrelation dramatisch. Dominierend ist hier eine asymmetrische Energieverteilung zwischen den beiden Elektronen, man findet am wahrscheinlichsten ein schnelles und ein langsames Elektron. Bekannt ist dies aus dem feldfreien (e,2e)-Prozess, wobei sich - analog zur Rutherford-Streuung - in Abhängigkeit vom Streuwinkel eine Energieaufteilung ergibt. Im Rückstreu-Prozess wird dementsprechend das erste Elektron nur wenig abgelenkt, überträgt nur einen kleinen Teil seiner Energie und erzeugt so nur ein niederenergetisches zweites Elektron. Das plötzlich am Ursprung auftretende Maximum lässt sich nicht sicher zu den „wirklichen“ Daten zählen, da sich der Untergrund auf den Achsen verteilt und ein solches Überbleibsel darstellen kann.
- Bei großen transversalen Impulsen (Teilbild d) ist die im integralen Bild schon zu sehende Korrelation erhalten und weiter ausgeprägt. Beide Elektronen sind am wahrscheinlichsten mit gleichem Impuls in der gleichen Halbkugel zu finden. Entweder wurde die Energie bei dem (e,2e)-Stoß auf beide Teilchen aufgrund des großen Streuwinkels oder durch den Einfluss des Laserfeldes gleich verteilt, so dass beide Elektronen mit gleichem Impuls ins Kontinuum gestartet sind. Wenn jedoch die Rückkehrenergie des ersten Elektrons gerade ausreicht, das zweite Elektron über die Potentialschwelle zu heben, können sie zwar mit unterschiedlichen, aber sehr

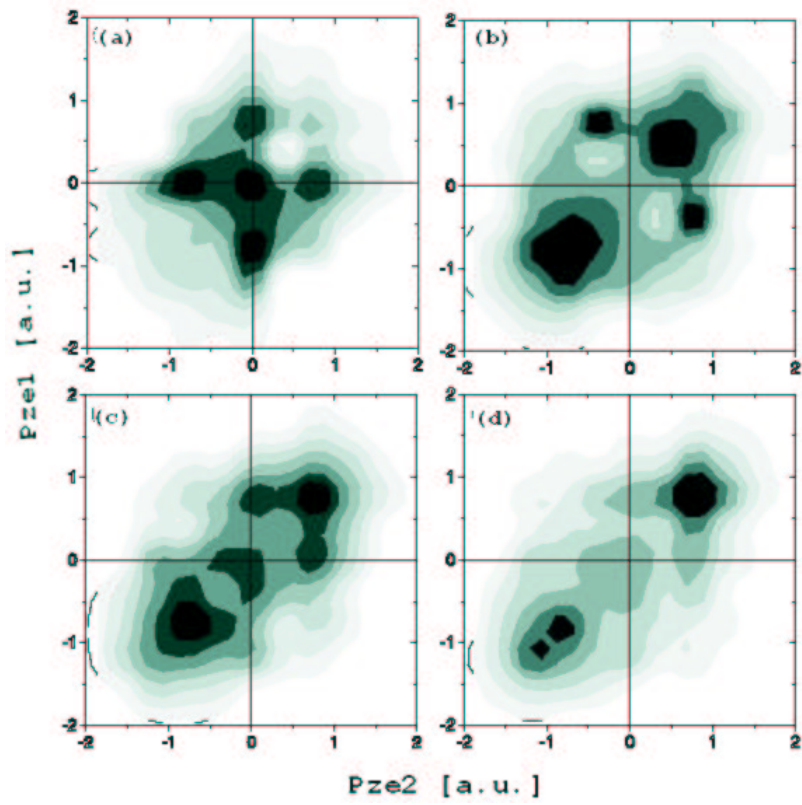


Abb. 2.17. Elektronenimpulse der Ar-Doppelionisation bei einer Intensität von $4.7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, wobei die Impulse von Elektron1 gegenüber Elektron2 aufgetragen sind. Die Spektren zeigen die Impulse parallel zur Polarisationsachse mit verschiedenen Bedingungen der transversalen Impulse eines Elektrons.

kleinen Impulsbeträgen ins Kontinuum starten. Das überlagerte Laserfeld überträgt auf beide Teilchen den gleichen Impulsbetrag und dominiert so die Bewegung.

Eine genaue Erklärung für den in Fig.(2.17) gesehenen Effekt gibt es leider noch nicht. Eine vollkommene Bestimmung der Bewegung durch das Laserfeld wird mit diesen Ergebnissen ausgeschlossen. Auch die Elektron-Elektron-Wechselwirkung, sowie die Wechselwirkung mit dem Kern müssen eine Rolle spielen. Weitere Experimente und auch theoretische Rechnungen sind hier notwendig. Diese Frage war eine der Hauptintensionen der hier vorliegenden Arbeit: Um die Drei-Körper-Wechselwirkung genauer untersuchen zu können, muss eine Geometrie gewählt werden, in der die Dominanz des Laserfeldes in der Beobachtung *ausgeschaltet* ist.

2.5.4 Quantitative Modelle

Neben den im Abschnitt „Nichtsequentielle Doppelionisation“ beschriebenen Modellen gibt es auch quantitative theoretische Ansätze. Einige seien hier exemplarisch vorgestellt:

- **S-Matrix:** Becker und Faisal [32] benutzen ein an die KFR-Theorie angelehntes Modell, um die nicht-sequentielle Doppelionisation zu berechnen. Es basiert auf einem exakten Zwei-Teilchen Zeitentwicklungsoperator und lässt sich anschaulich in einem Feynmangraphen darstellen.

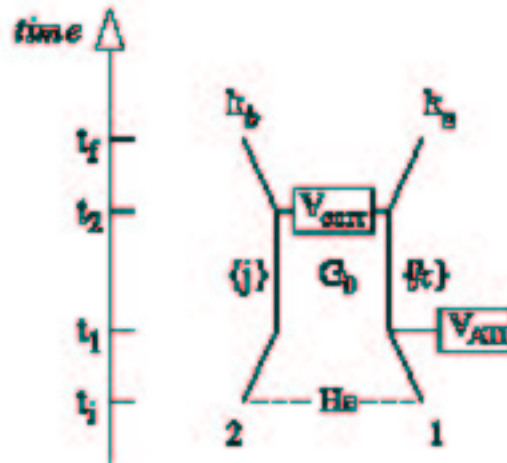


Abb. 2.18. Ein, mit der S-Matrix entwickelter Feynmangraph zur Beschreibung des Rückstreumechanismus [32].

Zunächst absorbiert das erste Elektron in einem virtuellen Prozess, ähnlich dem der ATI, eine Reihe von Photonen und propagiert in einem Volkov-Zustand. Dieses Teilchen hat keine feste, zugeordnete Energie, kann aber

im Laserfeld beschleunigt werden und so Energie aufnehmen. Anschließend teilt das erste Elektron diese Energie mit dem zweiten, noch gebundenen Elektron via Elektronenkorrelation. Zusätzlich kann an diesem Vertex weiter Energie aus dem Laserfeld aufgenommen werden. Im Endzustand der beiden Elektronen kann wahlweise eine weitere Wechselwirkung untereinander oder auch mit dem Kern berücksichtigt werden.

Die Übereinstimmung mit den experimentellen Impulsverteilungen und sogar mit der totalen Ionenausbeute ist hervorragend. Jedoch lässt sich aus der Rechnung keine Information über eine zeitliche Abfolge der einzelnen Schritte machen. Die Rechnung liefert nur integrale Raten.

Um den numerischen Aufwand zu verringern ersetzen Kopold et al. [33] die Elektron-Elektron Wechselwirkung durch ein Kontaktpotential und fügten ein Zero-Range-Potential in den Anfangszustand ein. Die erwarteten Doppelpeak-Strukturen wurden weiterhin beobachtet. Dazu füllte eine weitere Einführung von angeregten Zwischenzuständen das Minimum der Impulsverteilung bei den Ionen.

Weitere Abwandlungen der S-Matrix bietet die Saddle-Point-Approximation als Zwischenstadium der Doppelionisation. Goreslavskii und Popruzenko erhielten auch damit fast die gleichen Impulsverteilungen [34].

- **Zeitabhängige Schrödinger-Gleichung:** Die Aufgabe, die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung für Atome in elektromagnetischen Feldern numerisch lösen zu können, stößt in der Realität an die Grenzen moderner Computersysteme. Erste Ergebnisse zeigt die Gruppe von Taylor [35], wobei die Rechnungen mit Hilfe einer Cray T3D MCN512-8 (d.h. 512 Alpha-Prozessoren) durchgeführt wurden. Es wurde deutlich, dass ein nicht-sequentieller Prozess für die hohen Raten an zweifach geladenen Ionen verantwortlich ist, allerdings konnte dieser nicht genauer identifiziert werden.
- **Quantitative Rechnungen zum Rescattering-Mechanismus:** Vereinfachte quantenmechanische Rechnungen wurden von Watson et al. [36] durchgeführt. Dabei werden die zwei Elektronen als unabhängige Teilchen beschrieben, die sich in einem effektiven Potential bewegen. Das Potential setzt sich zusammen aus der Wechselwirkung mit dem jeweiligen anderen Elektron, mit dem Kern und mit dem Laserfeld. Für das äußere Elektron wird dabei angenommen, dass es sich bei dem durch die Ladungsverteilung des inneren Elektrons gebildeten Potential um ein zeitunabhängiges Potential handelt. Hingegen erfährt das innere Elektron durch die Ladungsverteilung des äußeren Elektrons ein zeitabhängiges Potential. Ein nicht-lokaler Austauschterm wird bei dieser Rechnung vernachlässigt. Die Ergebnisse der Rechnung zeigen gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Durch eine Unterdrückung der Rückkehr des ersten Elektrons (mit Hilfe eines absorbierenden Potentials) lässt sich die Rate der zweifach geladenen Ionen drastisch verringern, so dass der Rescattering-Prozess als der dominierende angenommen wird.
- **Empirische Formel:** Im Zusammenhang mit dem „Collective Tunneling Ionisation“-Modell wurde eine empirisch modifizierte Tunnelformel zur Berechnung der nichtsequentiellen Ionisationsrate in starken Laserfeldern gefunden [23].

Über diese theoretischen Ansätze hinaus gibt es noch eine Vielzahl an weiteren Arbeiten; einen guten Überblick erhält man in [56].

Kapitel 3

Experimentelle Grundlagen

Der Aufbau des Experimentes zur Messung von u. a. der Doppelionisation von Argon war eine Zusammenarbeit zwischen der Lasergruppe um P.Corkum in Kanada und unserer Gruppe um H.Schmidt-Böcking und R.Dörner hier in Frankfurt. Von unserer Seite waren wir mit vier Leuten an dem Experiment beteiligt. Dieses Kapitel soll einen kurzen Einblick in den strukturellen Aufbau der COLTRIMS-Kammer geben, d.h. im einzelnen über Jetsystem, Spektrometer, Detektoren und Auswertprogramm.

Weiter wird in diesem Kapitel auf den prinzipiellen Aufbau eines Ti:Sa-Lasersystems und die Welleneigenschaften eines Laserstrahls eingegangen.

3.1 COLTRIMS

Viele experimentelle Nachweismethoden können nur einzelne Bilder, integrale Daten oder einen begrenzten Raumwinkel von bewegten Teilchen liefern. Hochauflösende Detektoren können trotz aller Raffinesse nur die Endzustände der auftreffenden Teilchen messen, die Dynamik einer ablaufenden Reaktion sowie die Korrelationseffekte bei Vielteilchenreaktionen sind jedoch nicht direkt messbar.

COLTRIMS („Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“) ist eine vor über zehn Jahren von Schmidt-Böcking und Ullrich [37] entwickelte experimentelle Methode, um Vielteilchensysteme kinematisch vollständig untersuchen zu können. Der Aufbau besteht aus einem Zusammenspiel von (siehe Fig.3.1)

- gekühltem, lokalisiertem Gastarget
- Spektrometer
- positionssensitiven Detektoren
- Aufnahmesystem

Der Gasjet kann beliebig mit einem Laser-, Atom- oder Ionenstrahl gekreuzt werden, die Größe der Targetzone wird durch den Überlapp beider bestimmt. Mit Hilfe von vielen, durch Widerstände verbundenen Kupferplatten wird ein

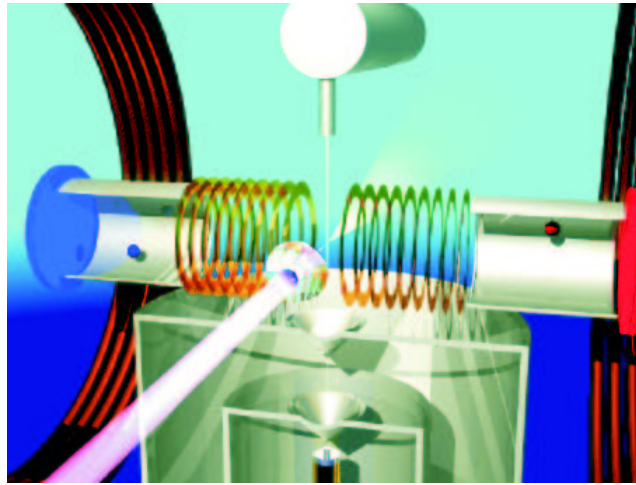


Abb. 3.1. COLTRIMS (Cold Target Ion Momentum Spectroscopy)

homogenes Feld erzeugt; positiv und negativ geladene Teilchen werden in entgegengesetzte Richtungen beschleunigt. Um die schweren positiven Ionen (blaue Teilchen im Bild) besser voneinander separieren zu können und eine bessere Flugzeitauflösung zu bekommen, lässt man die Teilchen nach der Beschleunigung durch einen feldfreien Raum, die sog. Driftstrecke, laufen. Die leichteren und dadurch schnelleren Elektronen (rote Teilchen im Bild) werden durch ein überlagertes, magnetisches Feld auf Kreisbahnen gezwungen. Alle Teilchen werden mit zeit- und ortsempfindlichen Detektoren nachgewiesen; damit sind alle Informationen vorhanden, um die Anfangsimpulse der einzelnen Teilchen zu berechnen und die abgelaufene Reaktion genau beschreiben zu können. Die einzelnen Teile werden im Folgenden genauer beschrieben. Für weitere Informationen siehe [37].

3.1.1 Gastarget

Die Reaktionskinematik sollte so gut wie möglich von der thermischen Bewegung der Teilchen getrennt sein. Die Lösung zu diesem Problem bietet ein gerichteter und gekühlter Überschallgasjet („supersonic gas jet“):

Expandiert Gas adiabatisch aus einer Kammer hohen Druckes durch eine kleine Düse in eine Kammer niedrigen Druckes, so wird die maximale Geschwindigkeit der Teilchen durch die umgebenden Vakuumdrücke und Temperatur bestimmt. Der Gasstrahl, der aus der Düse austritt, lässt sich durch das Verhältnis zwischen mittlerer freier Weglänge λ_0 und Düsendurchmesser D charakterisieren:

$$K = \frac{\lambda_0}{D} \quad (3.1)$$

Ist die *Knudsenzahl* $K > 10$, so handelt es sich um einen effusiven Strahl, das Gas passiert die Düsenöffnung ohne weitere Zusammenstöße. Bei der Expansion der Teilchen aus der Düse ist die thermische Energie Boltzmanverteilt. Wird dagegen $K \ll 1$, so kommt es innerhalb und nach der Düse zu vielen Stößen und

die innere Energie sowie die ungerichtete Bewegungsenergie werden in axiale Translationsenergie umgewandelt. Die Umwandlung bewirkt einen gerichteten Massefluss, dessen interne Temperatur T_{Jet} mit der Strahlgeschwindigkeit u sinkt. Für diesen Nichtgleichgewichtsvorgang kann man keine Temperatur im Sinne der thermostatischen Definition angeben, sondern lediglich Äquivalenztemperaturen. Die Vorgänge während der Expansion hängen von mehreren Bedingungen wie etwa Anfangsdruck, Gasgemisch, Düsenkanallänge und -öffnung ab.

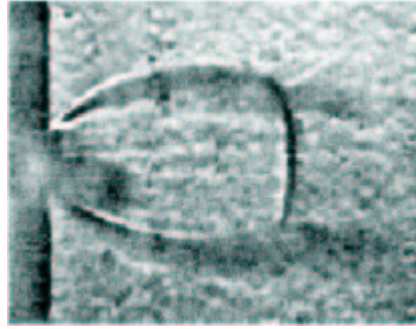


Abb. 3.2. Schlierenbild einer rotationssymmetrischen Supersonic-Jet-Expansion [38].

Betrachtet man für ein ideales Gas mit der Masse m und der Wärmekapazität C_p die adiabatische Expansion unter Berücksichtigung der Energieerhaltung, so gilt folgender Zusammenhang:

$$C_p T_0 = \frac{mu^2}{2} + C_p T_{Jet} \quad (3.2)$$

T_0 sei die Temperatur des Gases vor der Expansion. Weiter definiert man die Machzahl M als das Verhältnis von Strömungsgeschwindigkeit u zu lokaler Schallgeschwindigkeit a des Gases

$$M = \frac{u}{a} \quad (3.3)$$

Ist $M > 1$, spricht man von *Überschallgeschwindigkeit*. Die lokale Schallgeschwindigkeit ergibt sich dann zu

$$a = \sqrt{\frac{\gamma \cdot RT_0}{m}} \quad (3.4)$$

mit $\gamma = C_p/C_v$. Die Machzahl lässt sich damit ausdrücken als

$$M = \sqrt{\frac{2}{\gamma - 1} \left(\frac{T_{Jet}}{T_0} - 1 \right)}. \quad (3.5)$$

Für die Temperatur des Gasstrahls ergibt sich dann

$$\frac{T_{Jet}}{T_0} = \left(1 + \frac{(\gamma - 1)M^2}{2} \right)^{-1}. \quad (3.6)$$

Man erkennt, dass die Temperatur des Strahls um so kleiner ist, je größer die Machzahl wird. Ebenso kann man die Machzahl M als eine Funktion des Abstandes Düse-Skimmer betrachten

$$M \cong c \left(\frac{x}{D} \right)^{\gamma-1}, \quad (3.7)$$

wobei x der Abstand Düse-Skimmer ist, D der Düsendurchmesser und c eine Konstante ist, die von γ abhängt (für Argon ist $c=1.33$).

Das ausströmende Gas wechselwirkt mit dem Restgas der Umgebung, es bilden sich unterschiedliche Zonen aus (Abb.3.2 und Abb.3.3).

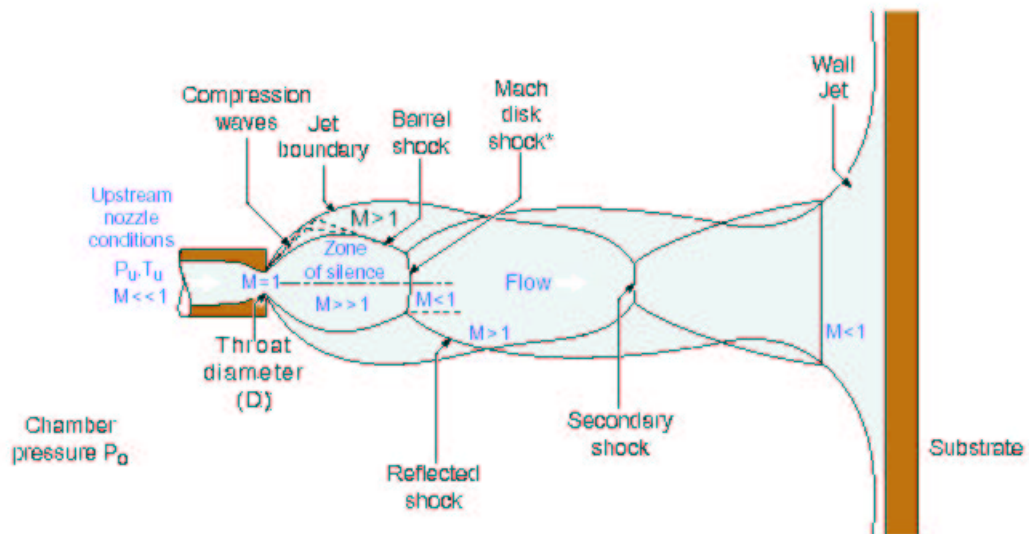


Abb. 3.3. Schematische Struktur einer Jet-Expansion [39].

Den von Stoßwellen eingeschlossenen Bereich mit $M \gg 1$ nennt man die *Zone of Silence*, das Gas strömt hier laminar. Das Fehlen von Turbulenzen ist eine Folge der Zähigkeit des überschallschnell strömenden Gases. An der Stoßwelle „hören“ die Gasteilchen erstmals das umgebende Restgas, es entsteht ein sehr heißer und dichter Bereich, dessen Tiefe mit der Intensität der Stoßwelle wächst. Der Skimmer taucht in die *Zone of Silence* und schält so einen gerichteten, schmalen Atomstrahl niedriger Temperatur als Target heraus (Abb.3.4).

Die Umwandlung von thermischer in gerichtete Energie führt zu einer sehr effektiven Abkühlung des Gases, teilweise bis in den Bereich weniger Kelvin. Im mikroskopischen Bild [40] bedeutet die Abkühlung des Gases, dass die statistisch verteilten Bewegungen der Gasatome reduziert werden (siehe Abb.3.5): Man betrachte die Bewegung eines Gases nur in der x -Richtung. Da die Bewegungen statistisch verteilt sind, ist es genauso wahrscheinlich, dass sich ein Atom mit einer bestimmten Geschwindigkeitskomponente nach rechts ($+x$) wie nach links ($-x$) bewegt. Die Geschwindigkeitskomponente v_x ist also symmetrisch in der Links-Rechts-Richtung um die wahrscheinlichste Geschwindigkeit

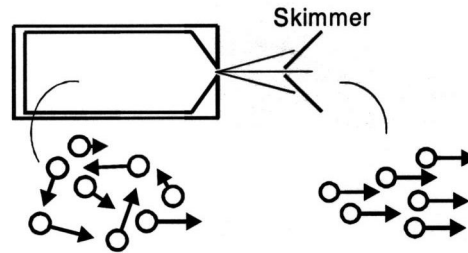


Abb. 3.4. Gerichteter Gasjet

$v_x = 0$ verteilt. Bewegt sich nun ein zunehmender Teil der Atome mit einer Geschwindigkeit die nahe $v_x = 0$ liegt, so sinkt die Temperatur des Gases. Die Breite der Geschwindigkeitsverteilung ist deshalb ein Maß für die Temperatur. In einer Überschallexpansion ist jedoch die wahrscheinlichste Geschwindigkeitskomponente in Strahlrichtung nicht Null, da sich das Gas mit verschiedenen Flußgeschwindigkeiten von der Düse fortbewegt. Die Temperatur ist unabhängig von der Flußgeschwindigkeit, da die chemischen und physikalischen Eigenschaften eines Gaspaketes nur davon abhängen, was in der unmittelbaren Umgebung passiert. Die Reduktion der Geschwindigkeitsverteilung in einem Überschallstrahl nennt man auch Translationskühlung. Gäbe es keine Stöße zwischen den Atomen, dann würden sie sich gemäß ihrer Transversalgeschwindigkeit räumlich trennen. Beliebige kleine Gaspakete bestehen demnach aus Atomen gleicher Transversalgeschwindigkeit und sind in dieser Richtung abgekühlt. Nahe der Düse ist der Gasdruck im Strahl noch relativ hoch; dort kollidieren die Teilchen fortwährend miteinander. Diese Stöße bewirken nun eine teilweise Gleichverteilung zwischen den transversalen Geschwindigkeitskomponenten und den anderen Freiheitsgraden in der Bewegung der Atome. Die Folge ist eine Kühlung der longitudinalen Geschwindigkeitskomponente, also parallel zu der Richtung des Gasstrahls.

Nachdem das Gas durch die Düse expandiert ist, vergrößert sich jedoch der mittlere Abstand zwischen den Atomen, und die Zahl der Stöße nimmt ab. Dieser Kühlung ist also ein sich selbst begrenzender Prozeß.

3.1.2 Spektrometer

Die in einer Reaktion entstandenen Teilchen werden mit Hilfe von elektrischen und magnetischen Feldern auf die Detektoren projiziert. Die Feldgeometrie des Spektrometers kann dem jeweiligen Experiment angepasst werden, so dass alle entstehenden Energien und Impulse der Ionen und Elektronen abgebildet werden können.

Abb.3.1 zeigt ein typisches Beispiel für ein COLTRIMS-Spektrometer. Aus Auftreffort und Flugzeit wird der Startimpulsvektor der Teilchen berechnet. Target und Laserstrahlintensitäten sind so gewählt, dass möglichst Einzelstoßbedin-

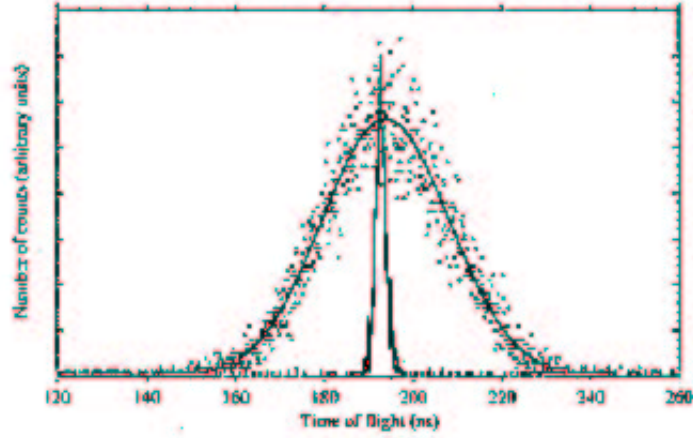


Abb. 3.5. Zu sehen ist die Ionen-Flugzeitverteilung eines Überschallgasstrahls (schmale Verteilung) und eines warmen diffusen Hintergrundgases (breite Verteilung) [41].

gungen vorliegen und man mittels Flugzeiten die Teilchen eindeutig und einer Reaktion zuordnen kann.

Die Bewegung der Teilchen in elektrischen und magnetischen Feldern wird im Folgenden kurz vorgestellt:

Elektrisches Feld

Das elektrische Feld \vec{E} leitet Elektronen und Ionen von der Targetzone in entgegengesetzte Richtungen. Entlang der Spektrometerachse z erfahren die geladenen Teilchen mit der Anfangsgeschwindigkeit v_0 in einer Strecke von x_1 eine gleichförmige Beschleunigung von

$$\vec{a} = \frac{\vec{E}q}{m}, \quad (3.8)$$

fliegen eine Zeit

$$t_1 = \frac{v_0}{a} \pm \sqrt{\frac{v_0^2 + 2x_1a}{a^2}} \quad (3.9)$$

im elektrischen Feld und besitzen danach eine Geschwindigkeit von

$$v_1 = v_0 + at_1 = \sqrt{v_0^2 + 2x_1a} + v_0. \quad (3.10)$$

Nach der Beschleunigung werden die Teilchen in einen feldfreien Raum der Länge x_2 zum Driften geschickt (siehe Abb.3.6). Die Zeit des Driftens t_2 ist gegeben durch

$$t_2 = \frac{x_2}{v_1} \quad (3.11)$$

und man erhält eine Gesamtflugzeit von

$$t_{ges} = \frac{1}{a} \left(v_0 + \frac{ax_2}{v_1} \pm \sqrt{v_0^2 + 2x_1a} \right). \quad (3.12)$$

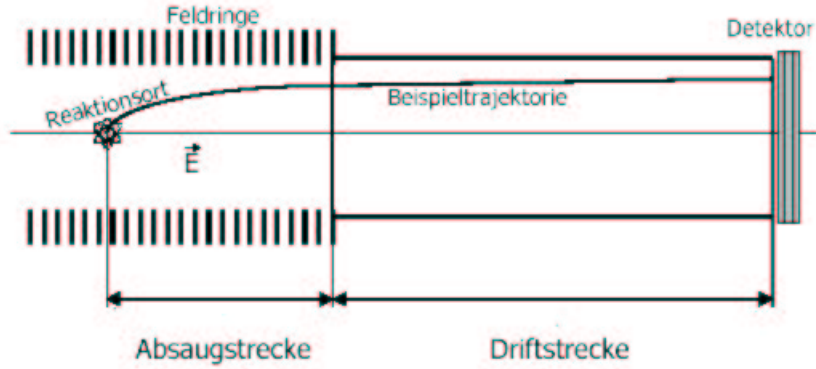


Abb. 3.6. Skizze eines Spektrometerarms [37]: Das Teilchen wird mit Hilfe des Absaugfeldes in Richtung Detektor gelenkt, durchfliegt danach einen feldfreien Raum (Driftstrecke) und wird im Detektor selbst stark nachbeschleunigt.

Senkrecht zur Spektrometerachse wirken keine Kräfte auf die Teilchen, die Geschwindigkeiten sind durch die Auftrefforte auf dem Detektor gegeben durch

$$v_{x,0} = \frac{x}{t_{ges}} \quad \text{und} \quad v_{y,0} = \frac{y}{t_{ges}}. \quad (3.13)$$

Magnetisches Feld

In den meisten Coltrims-Experimenten haben Ionen und Elektronen einen vergleichbaren Impuls. Aufgrund des großen Masseunterschiedes besitzen die Elektronen jedoch eine viel größere Energie bzw Geschwindigkeit. Um trotzdem Elektronen aus dem gesamten Raumwinkel detektieren zu können, zwingt man sie durch ein überlagertes magnetisches Feld auf kleine Kreisbahnen. Abb.3.7 und Abb.3.8 zeigen die simulierten Flugbahnen von drei Elektronen in einem elektrischen und magnetischen Feld. Zur Verdeutlichung der Schraubenbahn starten die drei Teilchen mit jeweils unterschiedlichen Winkeln zur Spektrometerachse.

Die Lorentzkraft $\vec{F}_L = q\vec{v} \times \vec{B}$ hat dabei nur auf die, zu den Feldlinien senkrecht stehende Komponente der Teilchen Einfluss. Durch ein Gleichsetzen von \vec{F}_L mit der Zentripetalkraft erhält man den Gyrationradius

$$r_{gyr} = \frac{mv_{\perp}}{qB} \quad (3.14)$$

und die Umlaufdauer

$$T_{gyr} = \frac{2\pi m}{qB}. \quad (3.15)$$

Elektronen, die also senkrecht zur Spektrometerachse starten, bewegen sich durch die Kombination von elektrischen und magnetischen Feldern auf einer Schraubenbahn zum Detektor (siehe Abb.3.9).

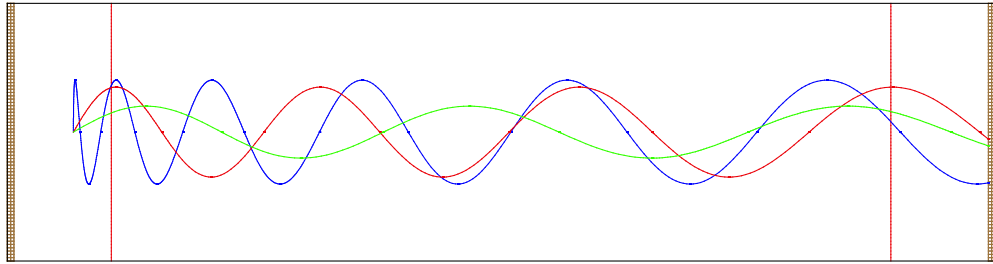


Abb. 3.7. XY-Ansicht der Bewegungen der Elektronen: Die grüne Trajektorie startet unter einem Winkel von 30Grad, die rote Trajektorie unter einem Winkel von 60Grad und die blaue Trajektorie startet senkrecht zur Spektrometerachse.

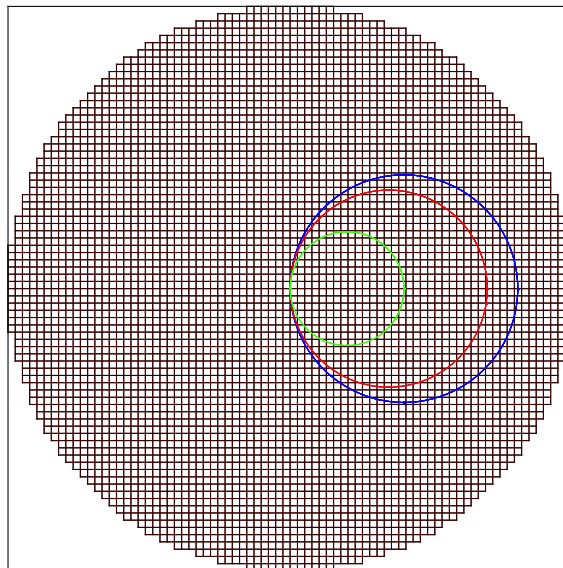


Abb. 3.8. Detektoraufsicht der in Abb.3.7 beschriebenen Elektronen. Sehr schön sieht man die Abhängigkeit der Gyrationenperiode von der senkrechten Komponente der Anfangsgeschwindigkeit.

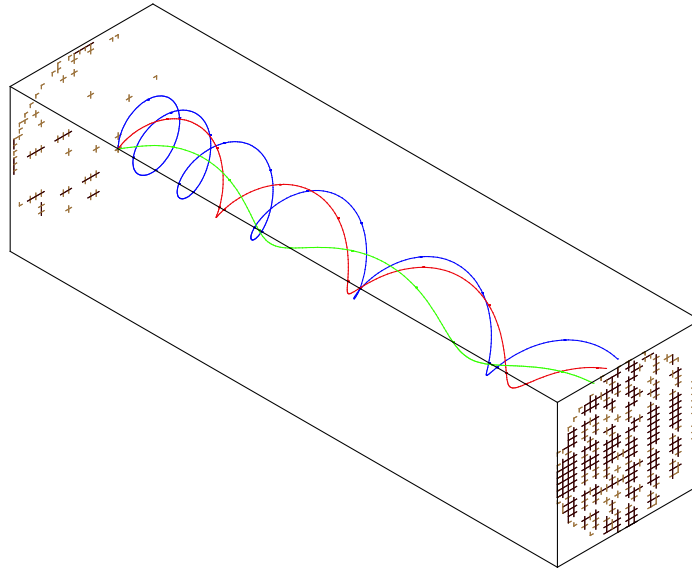


Abb. 3.9. Zu sehen sind die in Abb.3.7 beschriebenen Elektronen in 3D-Ansicht.

3.1.3 Detektoren

Für den Nachweis der in einer Reaktion entstandenen Teilchen ist ein *Delay Line Detector System* aufgrund der kompakten Bauweise, einer hohen Verstärkung und der ortsauflösenden Messung die optimale Lösung. Mit den Komponenten Microchannel-Plates (MCPs) und Delay-line Anode lassen sich Flugzeit und Auftreffort in hoher Auflösung bestimmen, aus denen wiederum der Impuls berechnet werden kann. Beide Komponenten werden von der Firma Roentdek hergestellt und seien hier kurz vorgestellt. Genauere Informationen findet man unter [32].

MCPs

In einer Mikrokanalplatte (*micro channel plate*) ist die Funktion der Photoelektronenvervielfachung mit einer räumlichen Auflösung vereinigt. Eine MCP besteht aus einem dünnen Glasplättchen, in dem sich unter einem Winkel von ca. 5-10 Grad viele mikroskopisch kleine Kanäle befinden (Abb.3.10).

Legt man zwischen Vorder- und Rückseite der MCPs eine typische Hochspannung von 1000-1500V pro Channelplate, so arbeitet jeder dieser Kanäle wie ein Sekundärelektronenvervielfacher: Ein ankommendes Teilchen löst beim Auftreffen auf die Wandung eines Kanals ein Elektron aus, dieses wird wiederum durch die Hochspannung zur Rückseite beschleunigt und trifft erneut auf eine Wand. Die Stoßwahrscheinlichkeit wird durch die Krümmung der Kanäle noch erhöht. Da das Elektron inzwischen beschleunigt wurde, kann es nun mehrere Teilchen herausschlagen und es entsteht durch die mehrfache Wiederholung des Prozesses eine Elektronenlawine (siehe Abb.3.11). Diese kann beim Auftreffen auf die Anode als ein Spannungsimpuls aus dem System ausgekoppelt werden und stellt

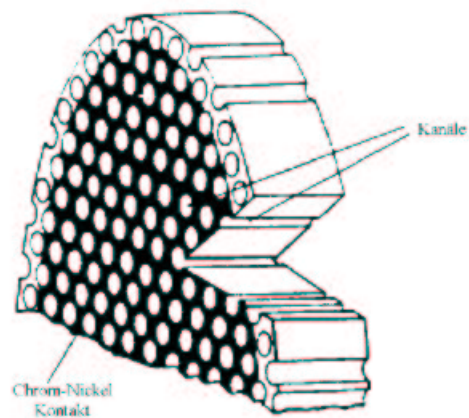


Abb. 3.10. Schematischer Aufbau eines *micro channel plate* [57].

somit das Signal „Ein Teilchen ist angekommen!“ dar. Die Anzahl der erzeugten Sekundärelektronen ist abhängig von der angelegten Verstärkungsspannung, dem Verhältnis von Kanallänge zu Durchmesser, der Beschichtung der Kanäle und der Energie des einfallenden Elektrons. Als ein Maß für die Verstärkung kann die, der austretenden Ladungsmenge proportionale Fläche unter dem Anodenpuls dienen.

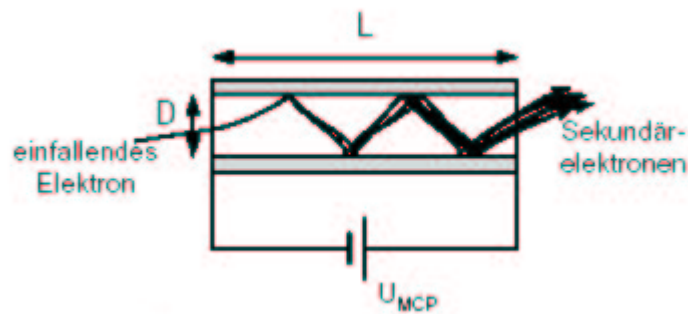


Abb. 3.11. Entstehung einer Elektronenlawine: Das nachzuweisende Teilchen wird in einem elektrischen Feld beschleunigt und kann beim Auftreffen auf eine Wand mehrere Elektronen herausschlagen. Diese nehmen weiter Energie im Feld auf und schlagen ihrerseits noch mehr Elektronen heraus. Mit dieser Art der Vervielfachung kann eine Verstärkung von 10^3 bis 10^4 erreicht werden.

In der Praxis weichen jedoch die angenommenen Trajektorien der Elektronen im MCP durch Raumladungseffekte und Feldinhomogenitäten ab. Als die wesentlichsten verstärkungsbegrenzenden Effekte sind Ladungs- und Stromsättigung, sowie Ionenrückkopplung zu nennen:

- Die Raumladungswolke der Sekundärelektronen verzerrt innerhalb eines Kanals das Beschleunigungsfeld. Aufgrund der kurzen Flugzeit der Sekundärelektronen durch die MCPs ist dieser Effekt aber nicht dominant.
- Bei der Ionenrückkopplung werden dagegen Restgasmoleküle von der Elektronenlawine ionisiert. Da die Wahrscheinlichkeit für eine solche Ionisation proportional zur Elektronendichte ist, ist sie am häufigsten am Ende eines Kanals zu finden. Die ionisierten Moleküle werden nun, gemäß dem von außen angelegten Feld, in Richtung Kanaleingang beschleunigt und können weitere Sekundärelektronen auslösen; ein Nachfolgepuls wird ausgelöst. Dieser Prozess kann sich ständig wiederholen und beschränkt so die Verstärkung bei geraden Kanälen.

Um speziell die Ionenrückkopplung zu reduzieren, bedient man sich unterschiedlicher Anordnungen:

1. MCPs mit gekrümmten Kanälen, die sog. J-Bauweise
2. Chevron-Bauweise
3. Z-Bauweise

Das bei unserem Experiment verwendete *Chevron* besteht aus zwei hintereinander angeordneten MCPs, deren Kanalachsen nicht parallel zueinander verlaufen (siehe Abb.3.12). Dieser Anordnung verhindert, dass die mittlere freie Weglänge der positiven Ionen groß genug wird, um in den Eingangsbereich der Kanäle zu gelangen und einen Nachfolgepuls auszulösen. Eine Verstärkung von bis zu 10^8 kann so erreicht werden.

Die Geschwindigkeitskomponente entlang der Spektrometerachse (z-Achse) wird

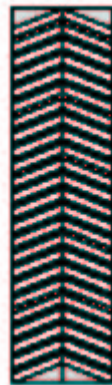


Abb. 3.12. Chevron-Anordnung: Zwei MCPs werden mit nicht parallel zueinander verlaufenden Kanalachsen hintereinander geschaltet.

durch einen Spannungsimpuls zur Zeit t an den *micro channel plates* nach Auftreffen eines Teilchens und Erzeugung der Sekundärelektronen bestimmt.

Delay-line Anode

Die von den MCPs kommende Elektronenwolke driftet einige Millimeter im Raum, bevor sie auf eine Anode trifft, die den Auftreffort der Sekundärelektronen und damit die Geschwindigkeitskomponenten in x- und y-Richtung ermittelt. Die Anode selbst besteht aus vier dünnen Drähten, von denen jeweils zwei in x- bzw. y-Richtung gewickelt sind und dadurch ein feinmaschiges Gitter aufspannen (siehe Abb.3.13).

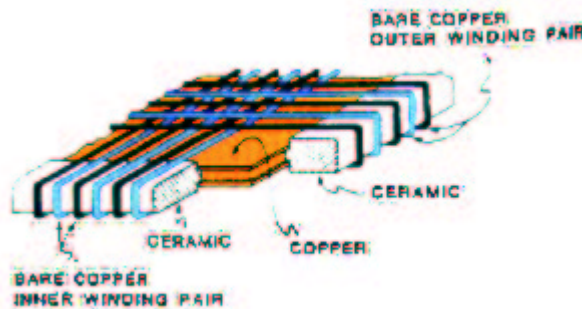


Abb. 3.13. Die Anode besteht aus vier dünnen Drähten, die um einen Metallkörper gewickelt und durch Keramik isoliert sind. Genauere Beschreibung siehe Text.

Die Sekundärelektronen eines jeden Teilchens, das auf die MCPs auftrifft, erzeugt so 8 Spannungsimpulse, von denen jeweils 2 über die Länge des Drahtes und die Abflußgeschwindigkeit der aufgebrachten Ladung zeitlich miteinander korreliert sind. Für jeden Layer ergeben sich so zwei Drähte (Signal- und Referenzdraht), die beide den gleichen Störsignalen von außen ausgesetzt sind. Legt man zwischen diese beiden Drähte eine kleine Potentialdifferenz, so werden die Elektronen auf nur einen Draht gesaugt (Lecher-Leitung). Die Signale werden über ein RC-Glied ausgekoppelt und weiter verstärkt. Aus der Differenz beider Ausgangssignale können Störsignale eliminiert werden.

Die Laufzeitdifferenzen der elektrischen Impulse bezüglich der jeweils korrelierten Drahtenden ist ein Maß für die Entfernung des Auftreffortes zu den jeweiligen Drahtenden (Abb.3.13). Teilchen auf der Spektrometerachse dürfen demnach auf keinem der Drähte eine Laufzeitdifferenz aufweisen; Teilchen, die „diagonal“ verschoben sind, weisen für beide Richtungen eine große Differenz auf. Die gemessenen Geschwindigkeitskomponenten sind jedoch nur dann aussagekräftig, wenn die Summe der Laufzeiten eine Konstante ergibt, die der zugehörigen Drahtlänge entspricht.

Alle Komponenten der vektoriellen Geschwindigkeit sind so mit Hilfe eines *Delay-line Detector Systems* mit hoher Genauigkeit meßbar.

3.1.4 Aufnahmesystem

Als ein Datenaufnahme- und Auswerteprogramm wurde von der Firma Roentdek das Programm CoboldPC (*Computer Based Online Offline Listmode Data-analyser*) für WindowsNT entwickelt. Als Schnittstelle und Kommunikationsmodul zwischen dem Programm und der Hardware des Experimentes dient eine *dynamic link library* (DAQ.dll). Für jeden ausgelesenen Channel, wie von z.B. einem TDC oder ADC, muss dafür eine Koordinate definiert werden. Die aufgenommenen Daten werden Event für Event in einem *List Mode File* gespeichert (Abb.3.14). Dies hat den großen Vorteil, dass das Experiment später in der Analyse Event für Event wiederholt werden kann. Die Analyse kann durch eine weitere Funktionsbibliothek (*dynamical link library*) DAN.dll mit CoboldPC durchgeführt werden. Abb.3.15 zeigt das Ablaufdiagramm von CoboldPC.

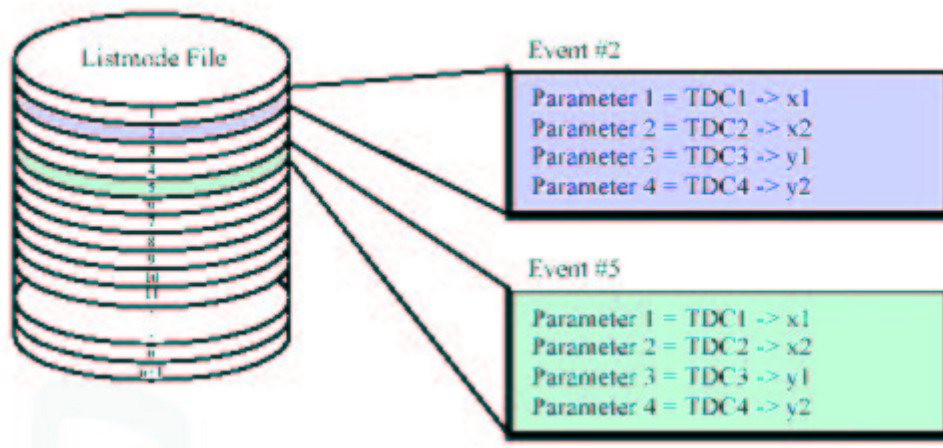


Abb. 3.14. Die aufgenommenen Daten werden in Form eines *List Mode Files* gespeichert, so dass das Experiment später auf dem Computer Event für Event nachvollzogen werden kann.

Es stehen auch andere Programme, wie z.B. das am CERN entwickelte PAW oder ROOT zur weiteren Analyse zur Verfügung.

3.2 Besonderheit eines Laser

3.2.1 Ti:Sa-Lasersysteme

Ein entscheidendes optisches Bauteil bei einem Laser ist das verstärkende Medium. Es gibt das spektrale Verstärkungsprofil vor und trägt so entscheidend zur Pulsbreite bei. Im Jahre 1982 wurde erstmals über einen mit Titan-Ionen dotierten Saphir-Kristall ($Ti : Al_2O_3$) als Lasermedium berichtet. Mit einem großen durchfahrbaren Frequenzbereich von 680nm bis 1100nm ist dieser Kristall eine ideale Quelle für Femtosekunden-Laserpulse.

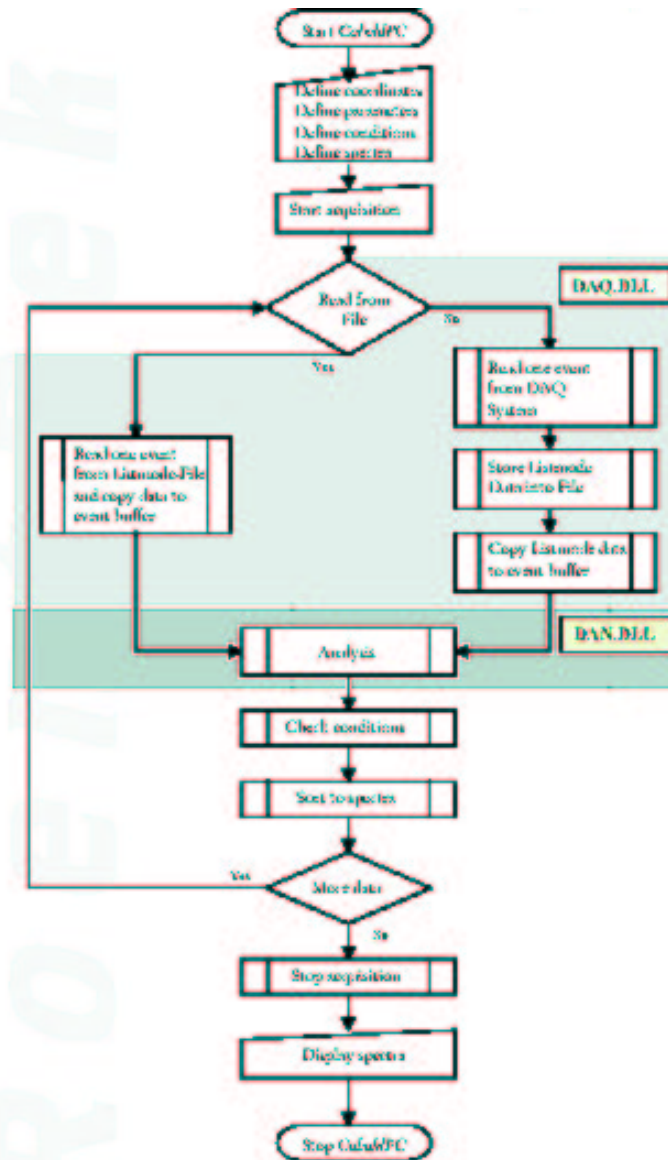


Abb. 3.15. „flow chart of CoboldPC data taking and analysis“

Die Energieniveaus des mit 0.2 Gewichtsprozent Titan-Ionen dotierten Saphir-Kristalls zeigen sehr starke Photonenverbreiterungen auf (Abb.??). Anders als bei freien Atomen sind die Energieniveaus im Festkörper nicht mehr diskret, sondern sie weisen Energiebänder auf.

Die Elektronen werden durch einen Pumplaser mit der Energie $h\nu_{pump}$ angeregt und so aus dem Grundzustand 2T_2 in eines der oberen Schwingungsniveaus des angeregten Zustandes 2E befördert. Nach einer strahlungslosen Relaxation aus

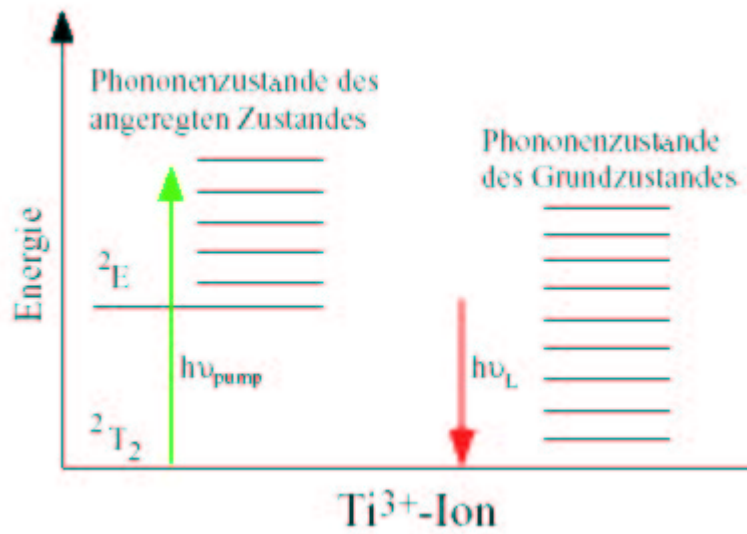


Abb. 3.16. Energieniveaus des Titan:Saphir-Kristalls [53]

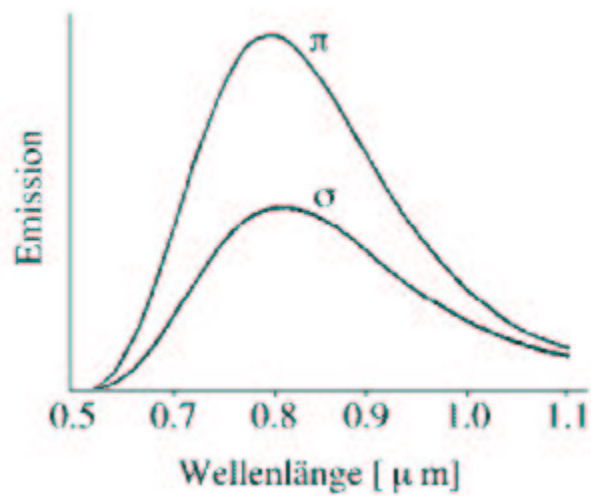


Abb. 3.17. Emissionsverhalten des Titan:Saphir-Kristalls

den oberen Phononenniveaus besetzen alle Elektronen das angeregte Niveau 2E . Es kommt zur Inversion der Besetzungsdichte und der Kristall emittiert spontan und induziert eine Welle der Energie $h\nu_L$. Doch bereits bei hohen Zimmertemperaturen wird die Lebensdauer des obigen Zustandes stark reduziert. In Abb.3.17 ist das Fluoreszenzverhalten des Kristalls gezeigt [53]. Man erkennt die schon oben angesprochene spektrale Breite mit einem Maximum bei 800nm. Der Laserkristall weist eine Vorzugsrichtung , eine sog. optische Achse auf; es

wird zwischen π - und σ -polarisiertem Licht unterschieden.

Um aus diesem kontinuierlich strahlenden Laser einen Kurzpulslaser zu machen, benötigt man einen Startmechanismus. Bei der Erzeugung von fs-Pulsen nutzt man die Tatsache, dass der Brechungsindex des Laserkristalls nichtlinear von der Intensität der optischen Welle abhängt: Läuft ein Strahl mit gaußförmiger Intensitätsverteilung im Querschnitt durch ein Medium mit einem von der Intensität abhängigen Brechungsindex, spüren die Randbereiche der Strahls einen anderen Brechungsindex als das Zentrum. Infolge der höheren Intensität in der Strahlmitte ist dort die Brechzahl größer, d.h. das Zentrum wird sich langsamer ausbreiten als die Randbereiche. Das Medium mit der inhomogenen Brechzahl wirkt wie eine Sammellinse, der Laserstrahl wird fokussiert. Durch die Fokussierung steigt nun die Feldstärke der Lichtes an, dadurch wird der Brechzahlgradient noch grösser und es setzt eine noch stärkere Fokussierung ein; usw. Eine quantitative Beschreibung der Selbstfokussierung findet sich in [54].

Abb.3.18 zeigt den schematischen Aufbau eines typische Ti:Sa-Lasersystems.

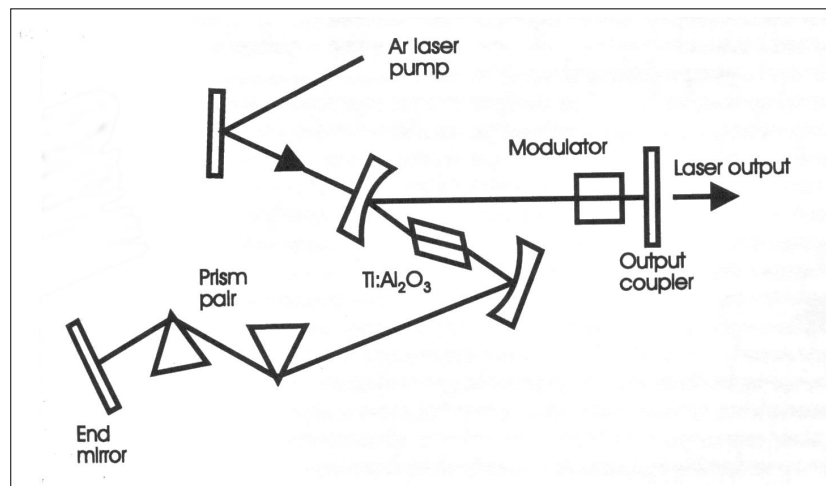


Abb. 3.18. Schematischer Aufbau eines Ti:Sa-Lasers.

3.2.2 Welleneigenschaft des Laserlichtes

Der idealisierte Bereich der geometrischen Optik ist nur bei sehr kleinen Wellenlängen ($\lambda \rightarrow 0$) gerechtfertigt. Phänomene wie Interferenzen oder Beugung sind allerdings nur durch die Wellennatur des Lichtes erklärbar. Doch auch die Reflexion oder Fokussierung eines Strahles zeigt bei genauerem Hinsehen eine Abweichung von der Strahlenoptik.

Für die Fokusgröße eines Laserstrahls sei folgende Abschätzung gemacht: Laserstrahlen haben eine Gaußverteilung. Fokussiert man sie mit Hilfe eines Spiegels oder einer Linse der Fokuslänge f auf einen Gasstrahl (Abb.3.19), so

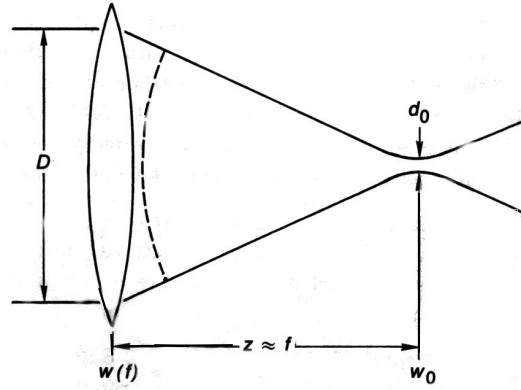


Abb. 3.19. Fokussierung eines Gaußstrahls mittels einer Linse (*Fernfeldnäherung*)

entsteht ein Fokuspunkt mit dem Radius w_0 . Nimmt man weiter an, dass sich z.B. die Linse im *Fernfeld* mit der Größe $w(f)$ befindet, so gilt folgender Zusammenhang [58]:

$$w_0 \times w(f) \approx \frac{f\lambda}{\pi} \quad (3.16)$$

In der Praxis sollte der Gaußstrahl die Linse so gut wie möglich ausfüllen, um einen Energieverlust zu vermeiden. Es sei also

$$D = \pi\omega(f) \quad (3.17)$$

mit einem angenommenen Verlust von < 1 Prozent bei dieser Linse. Mit einer $1/e$ -Verteilung des Strahls ergibt dies beim Fokuspunkt $d_0 = 2w_0$ nur noch 86 Prozent der ursprünglich eingestrahnten Energie, an den Rändern sind es sogar nur noch $1/e^2 \approx 14$ Prozent.

Kombiniert man die gemachten Annahmen, ergibt sich die Größe des Fokuspunktes zu

$$d_0 = 2 \cdot w_0 \approx \frac{2f\lambda}{D} \quad (3.18)$$

Mit der, in der Optik häufig benutzten Einführung der *f-Zahl*

$$f_{\#} \equiv \frac{f}{D} \quad (3.19)$$

erhält man

$$d_0 \approx 2f_{\#}\lambda. \quad (3.20)$$

Die *Tiefe* des Fokuspunktes lässt sich mit Hilfe der Rayleigh Range z_R [58] angeben

$$\text{Fokus-Tiefe} = 2z_R \approx 2\pi f^2 \lambda \approx \frac{\pi}{2} \left(\frac{d_0}{2} \right)^2 \lambda. \quad (3.21)$$

Wird der Strahl mit einer Leistung P eingestrahlt, so ist die Peak-Intensität in der Mitte des Fokuspunktes gegeben durch

$$I_0 = \frac{2P}{\pi\omega_0^2} \approx \frac{P}{2(f\lambda)^2}. \quad (3.22)$$

Um eine möglichst hohe Intensität im Fokus zu bekommen, sollte demnach die Brennweite der Linse bzw des Spiegels so klein wie möglich sein.

Kapitel 4

Experimentelle Realisierung

Ein großer Vorteil von COLTRIMS ist seine flexible Bauweise, die stets auf das durchzuführende Experiment angepasst werden kann. Die einzelnen Grundbausteine wurden schon im letzten Abschnitt beschrieben; dieses Kapitel soll nun die Spezifikationen des von uns aufgebauten Experimentes zur Untersuchung der Doppelionisation von Argon erläutern.

Das Ti:Sa-Lasersystem wurde von der Corkum-Gruppe in Kanada gestellt und auch betreut, so dass hier nur kurz darauf eingegangen wird.

4.1 COLTRIMS-Aufbau

4.1.1 Gasjet

Bei Zimmertemperatur besitzt ein Gaststrahl bereits eine mittlere kinetische Energie von $E_T = \frac{3}{2}k_B \cdot T = 39\text{meV}$ und demnach eine so große Impulsverteilung, dass ein in der Reaktion übertragener Impuls auf das Ion nicht mehr meßbar wird. Um trotzdem in eine genügend gute Auflösung der Rückstoßionen zu bekommen, wird eine Kühlung notwendig. Die Siedetemperatur von Argon liegt bei 78K.

In diesem Sinne wird der Gasstrahl zuerst durch ein Kryostaten geleitet; um Clusterbildung innerhalb des Strahls zu vermeiden, bringt eine Gegenheizung des Strahl auf über 100K. Anschliessend expandiert das gekühlte Gas adiabatisch durch eine $30\mu\text{m}$ große Düse und durch geeignete Umgebungsdrücke stellt sich eine Überschallexpansion ein (siehe Abschnitt 3.1.1). In einem Abstand von ungefähr 7mm taucht ein $300\mu\text{m}$ großer Skimmer in die *Zone of Silence* und schneidet das eigentliche Gastarget heraus. Eine Übersicht gibt Abb.4.1.

Die empfindliche Stelle des Gasjets ist das Düsenplättchen; nur wenn es absolut dicht und gerade auf dem Kaltkopf sitzt, trifft der Gasstrahl den darübersitzenden Skimmer und es entsteht ein dichtes Gastarget (Abb.4.2). Der im Experiment gemessene lokale Druck am Entstehungsort der Teilchen lag jedoch nur in einem Bereich von $2 \cdot 10^{-7}\text{mbar}$; der fehlende Faktor von 100 scheint auf eine Fehljustage hinzudeuten.

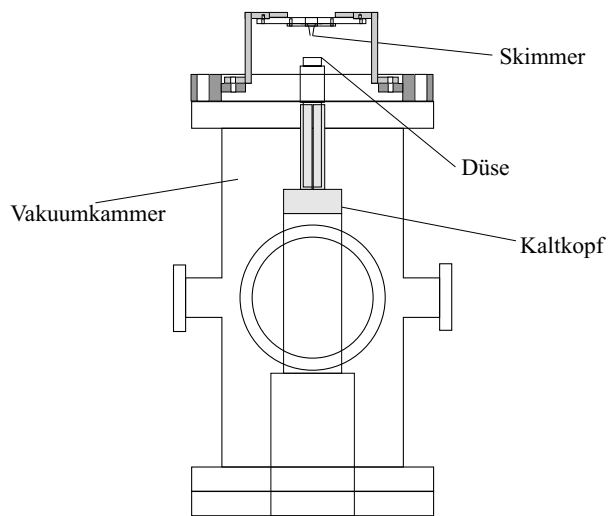


Abb. 4.1. 1-stufiger Argon-Gasjet



Abb. 4.2. Photo des Gasjets: Um die Dichtung des Düsenplättchens zu überprüfen, wird die ganze Spitze des Kaltkopfes in Ethanol getaucht.

4.1.2 Spektrometer und Detektoren

Das gebaute Spektrometer ist eine unabhängige Einheit des Experimentes und ist für die gleichzeitige Detektion von Ionen und Elektronen ausgelegt. Es ist so flexibel wie möglich gehalten, um für die verschiedenen Anwendungen schnell umgebaut werden zu können.

Das Spektrometer befindet sich in einer Ultra-Hochvakuumkammer, die über ein Pumpensystem mit hoher Saugleistung verfügt. In einem Doppelkreuzstück befindet sich die Wechselwirkungszone: durch den Skimmer im Bodenflansch

strömt das zu untersuchende Gas in die Zone; ein innerhalb der Kammer befindlicher Parabolspiegel kann bis auf einen Abstand von 5mm an die Zone herangeführt werden. Die Wechselwirkung des Lichtpulses mit dem Gas findet bei einem überlagertem elektrischem Feld statt. Dieses muss gross genug sein, um positiv und negativ geladenen Teilchen voneinander zu separieren und in die zueinander entgegengesetzten Spektrometerarme zu leiten. An den beiden Enden des Spektrometers befindet sich jeweils ein ortssensitiver Detektor, so dass die in der Reaktion entstandenen Fragmente in Koinzidenz gemessen werden können. Aus Auftreffort und Flugzeit lässt sich eindeutig der Startimpuls der einzelnen Teilchen bestimmen.

Der erste Schritt zur Realisierung eines Spektrometers ist die Simulation der Elektronen- und Ionentrajektorien im elektrostatischen Feld. Dazu muss die Laplace-Gleichung $\Delta\Phi = 0$ mit den vorgegebenen Randbedingungen gelöst werden. Hierbei unterscheidet man zwischen:

- Randbedingungen, die durch die auf konstantem Potential liegenden Elektroden geliefert werden (Dirichlet-Randbedingungen).
- Randbedingungen, die durch die Potentialänderung in Richtung der Normalen zwischen zwei auf verschiedenem Potential liegenden Elektroden gegeben sind (Neumann-Randbedingungen).

Das Programm *Simion* wurde 1995 von David D.Dahl am Idaho National Engineering Laboratory entwickelt [44]. Es bietet die Möglichkeit, Größe, Orientierung und Position von bis zu 200 Optikkomponenten frei zu wählen und die Flugbahnen geladener Teilchen abhängig von den jeweils gewählten Startparametern zu berechnen. Dazu werden Felder verwendet, die durch die Geometrie und das Potential von Elektroden und magnetischen Polen in einem Gittersystem festgelegt werden.

Simion löst die Laplace-Gleichung mit der Methode der *finiten Differenz-Technik*, die optischen Komponenten bestimmen die Randbedingungen. Dabei werden in einem Iterationsverfahren jeweils die nächsten vier bei 2D- bzw. sechs Nachbarpunkte bei 3D-Potentialfeldern verwendet, um neue Potentialwerte für die Gitterpunkte zu erhalten.

Die Trajektorien der geladenen Teilchen sind nun das Ergebnis von drei unabhängigen Rechnungen: Zuerst werden elektrostatische, magnetische und durch die Raumladung der Teilchen im Strahl auftretende abstoßende Kräfte aufgrund der momentanen Position und Geschwindigkeit der Teilchen berechnet. Diese Kräfte werden im zweiten Schritt zur Berechnung der Teilchenbeschleunigung verwendet. Mit der numerischen Runge-Kutta-Methode wird im dritten Schritt die Position und Geschwindigkeit der Teilchen für den nächsten Zeitschritt vorausberechnet. Um die Genauigkeit der Flugbahn zu maximieren, wird eine kontinuierliche Anpassung der Zeitschritte selbst als Funktion der einwirkenden Kraft durchgeführt.

Im folgenden sei die Impulskomponente parallel zur Spektrometerachse als Longitudinalimpuls $p_{||}$ bzw z-Richtung und der Summenvektor der beiden, auf der Spektrometerachse senkrecht stehenden Impulskomponenten als Transversalimpuls p_{\perp} bzw x- und y-Richtung definiert. Die einzelnen Spektrometerzweige seien im Folgenden kurz vorgestellt:

Ionenspektrometer

Die in der nicht-sequentiellen Doppelionisation entstehenden Ionen liegen im Energiebereich von $3 \cdot 10^{-3} eV$. Um den dreidimensionalen Impulsvektor der Teilchen zu erhalten, müssen Flugzeit und Auftreffort gemessen werden. Da die schweren Ionen einen nur sehr kleinen unterschiedlichen Transversalimpuls haben, muss das Ionenspektrometer eine hohe transversale Impulsaufösung aufweisen. Aus diesem Grund sollte das elektrische Absaugfeld in diesem Zweig so gering wie möglich gehalten werden.

Durch eine räumliche Ausdehnung der Wechselwirkungszone im μm -Bereich wird eine Orts- und Zeitfokussierung [37] in diesem Experiment nicht zwingend benötigt.

Um elektrische Feldsprünge bei dem Übergang von Beschleunigungs- und Driftstrecke zu vermeiden, werden sie durch ein feinmaschiges Gitter getrennt. Das Gitter wirkt dabei in Abhängigkeit von Maschenweite, Teilchenenergie und Feldgradienten wie ein Mikrolinsensystem; jede einzelne Masche fokussiert alle auftreffenden Trajektorien auf einen Punkt. In unserem Fall hätte diese Fokussierung die transversalen Impulskomponenten noch weiter verkleinert. Der gegenteilige Effekt einer Defokussierung wird dagegen bei einem Verzicht auf das Gitter beobachtet.

Es wurden Simulationsrechnungen für Argonionen mit und ohne Gitter zwischen Beschleunigungs- und Driftstrecke durchgeführt. Die unterschiedlichen y-Auftrefforte sind in der nachstehenden Tabelle aufgeführt:

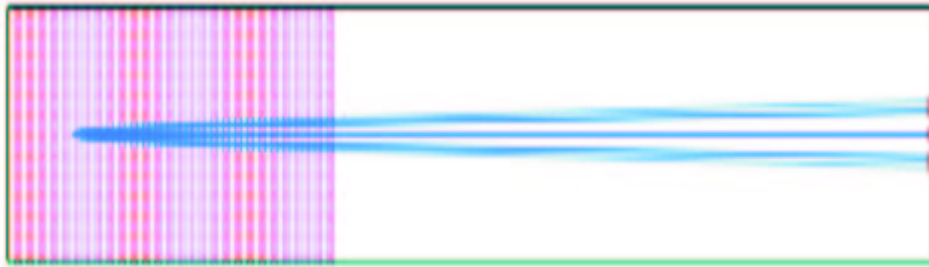


Abb. 4.3. Simulierte Ionenflugbahnen in der yz-Ebene mit Gitter.

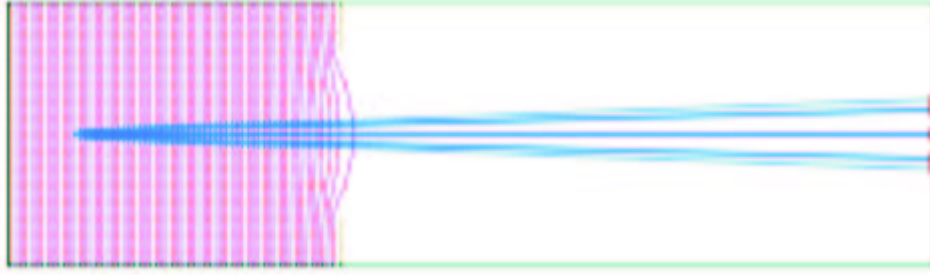


Abb. 4.4. Simulierte Ionenflugbahnen in der yz-Ebene ohne Gitter.

Auftrefforte von Abb.4.3		Auftrefforte von Abb.4.4	
Ion(1)	Y(0mm)	Ion(1)	Y(0mm)
Ion(2)	Y(7.05mm)	Ion(2)	Y(9.01mm)
Ion(3)	Y(10.06mm)	Ion(3)	Y(12.61mm)
Ion(4)	Y(7.14mm)	Ion(4)	Y(9.11mm)
Ion(5)	Y(5.79mm)	Ion(5)	Y(5.79mm)
Ion(6)	Y(-7.14mm)	Ion(6)	Y(-9.11mm)
Ion(7)	Y(-10.06mm)	Ion(7)	Y(-12.61mm)
Ion(8)	Y(-7.05mm)	Ion(8)	Y(-9.01mm)
Ion(9)	Y(0mm)	Ion(9)	Y(0mm)

In beiden Simulationen fliegen die Argonionen mit einer Energie $3 \cdot 10^{-3} eV$ in einem elektrischen Feld von $10.5V/cm^2$ in einem 40Grad-Abstand von Target weg. Ein Vergrößerungsfaktor von 1.25 konnte auch in den Messdaten beobachtet werden.

Die Ionen werden nach dem Durchfliegen der Beschleunigungs- und Driftstrecke auf dem Recoildetektor nachgewiesen (siehe Abb.4.5). Die angelegte Spannungsdifferenz von bis zu 2kV zwischen Vorder- und Rückseite der MCPs erfordert ein Vakuum besser als $10^{-5} mbar$ und limitiert so u.a. die Targetdichte. Um Felddurchgriffe des hohen Nachbeschleunigungsfeldes zu vermeiden, schließ die Driftstrecke mit einem Gitter ab.

Elektronenspektrometer

Im Vergleich zu den Ionen besitzen die Elektronen eine große Anfangsgeschwindigkeit, so dass ein relativ hohes elektrisches Absaugfeld benötigt wird, um alle Teilchen detektieren zu können. Ein zusätzlich überlagertes Magnetfeld parallel zur Spektrometerachse zwingt die Elektronen auf ihrem Weg zum Detektor auf eine Schraubenbahn. Elektronen, deren Flugzeit ein Vielfaches der Gyrationperiode entspricht, werden jedoch auf dem gleichem Punkt auf dem Detektor abgebildet; der Transversalimpuls dieser Teilchen lässt sich somit nicht mehr bestimmen.

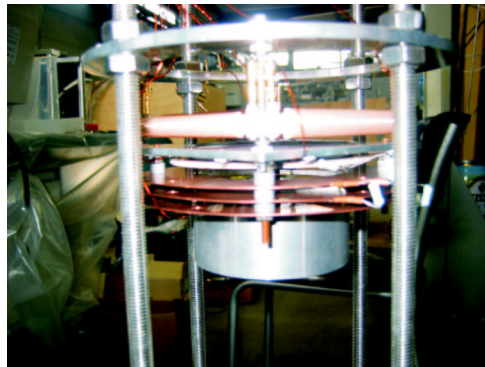


Abb. 4.5. Recoildetektor

Abb.4.6 zeigt die simulierten Trajektorien von 10eV Elektronen, die in einem elektrischen Feld von $10.5V/cm^2$ und einem magnetischen Feld von 6 Gauss in einem jeweiligen 40Grad-Abstand von der Wechselwirkungszone wegfliegen.

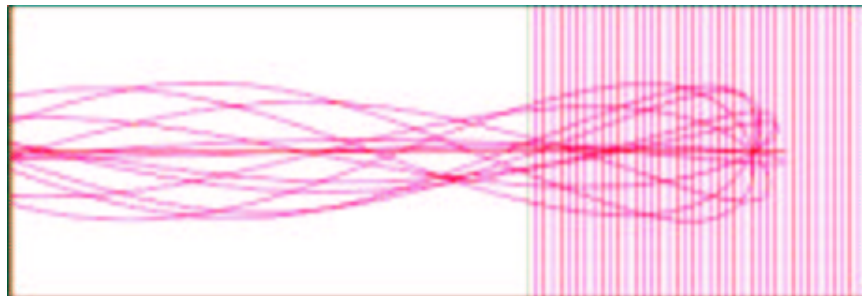


Abb. 4.6. Simulierte Elektronentrajektorien in der yz-Ebene

Bei der nicht-sequentiellen Doppelionisation werden zur „gleichen“ Zeit zwei Elektronen erzeugt; beide Teilchen treffen nach der Beschleunigungs- und Driftstrecke in wesentlich kürzeren Abständen auf den Elektronendetektor, als die Laufzeit eines Signals auf den Drähten ist. Man spricht von Multi-Hit-Ereignissen.

Zwei Signale müssen bei dem Auftreffen auf einen Detektor einen zeitlichen und räumlichen Mindestabstand voneinander haben, um von der Elektronik als einzelne Teilchen erkannt zu werden. Trifft ein erstes Teilchen in die Mitte einer quadratischen Delaline-Anode mit zwei Windungsebenen, so gibt es die in Abb.4.7, Teil A zu sehende Totzeitzone, in der ein zweites Teilchen nicht detektiert werden kann.

Eine deutliche Verbesserung der Multi-Hit Fähigkeit eines Detektors konnte durch das Hinzufügen eines dritten Layers erreicht werden. Die drei Ebenen des Detektors (Hexanode) bilden jeweils einen Winkel von 60 Grad zueinander, so dass der dritte Layer als eine Linearkombination der ersten zwei Layer aufge-

fasst werden kann. Ereignisse, die vorher in der Totzeit lagen, können nun durch die dritte Ebene eindeutig in Ort und Zeit zugeordnet werden. Die Totzeitzone verkleinert sich dadurch erheblich und entspricht nur noch einem kleinen Kreis um den Auftreffort des ersten Teilchens (siehe Abb.4.7, Teil B).

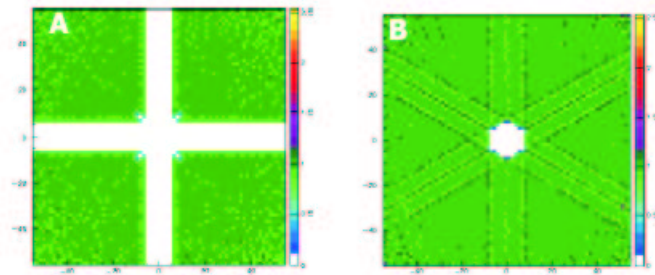


Abb. 4.7. Die Totzeitzonen bei A) einer quadratische Anode und B) Hexanode, wenn das erste Teilchen in der Mitte auftrifft [42].

Die in unserem Experiment verwendete Hexanode ist in Abb.4.8 zu sehen.

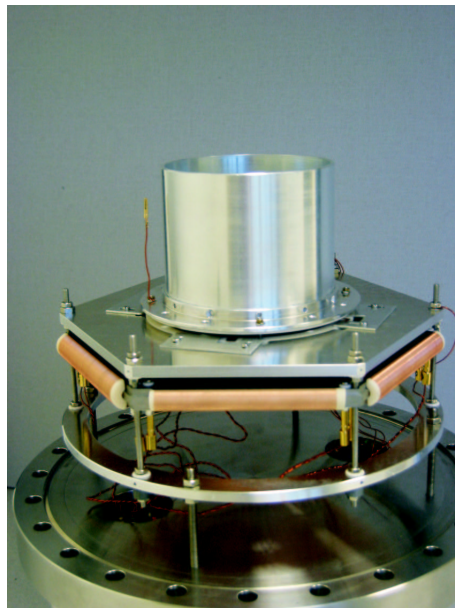


Abb. 4.8. Hexanode

Für das gesamte Spektrometer musste ein Kompromiss zwischen dem gewünschten 4π -Raumwinkel für die Elektronen und einer möglichst guten transversalen Impulsauflösung für die Ionen gefunden werden. Einen schematischen Überblick gibt Abb.4.9, ein Photo des Spektromters zeigt Abb.4.10:

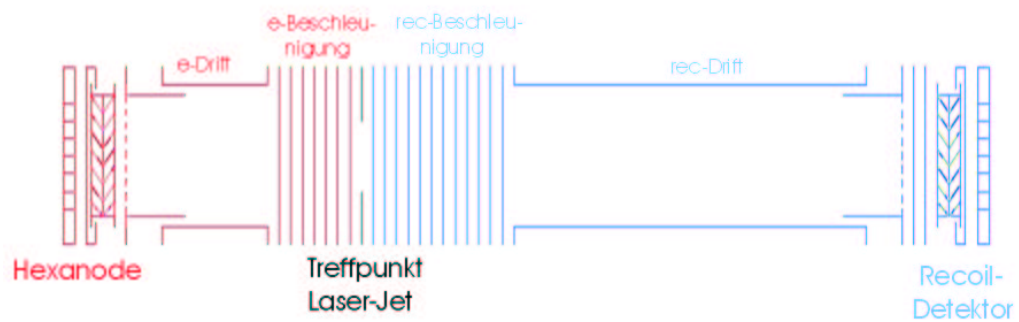


Abb. 4.9. Schematische Darstellung des gesamten Spektrometers mit Detektoren.

Die in einem jeweiligen Abstand von 5mm stehenden Kupferplatten sind mit einer Spannungsquelle verbunden und durch jeweils $100k\Omega$ -Widerstände voneinander getrennt. Der feldfreie Raum der Drift wird durch eine Aluminiumröhre realisiert. Das magnetische Feld wird mit zwei großen Helmholtzspulen und zwei kleinen Korrekturspulen außerhalb der Vakuumkammer erzeugt (Abb.4.11).

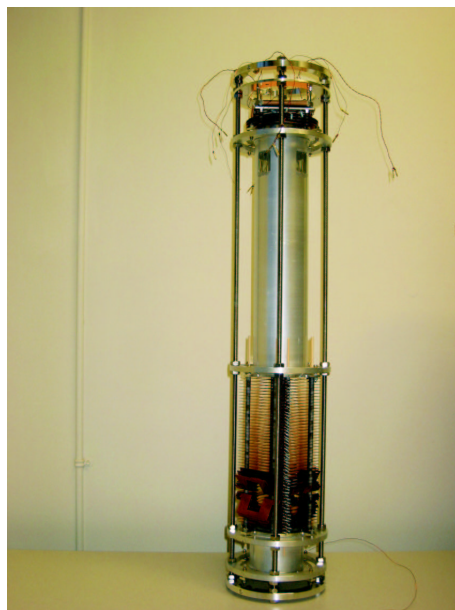


Abb. 4.10. Photo des gebauten Spektrometers.

4.1.3 Elektronik

Von Elektronen- und Ionendetektor werden jeweils ein Zeit- und vier Anodensignale mittels RC-Gliedern kapazitiv von der Hochspannung ausgekoppelt und

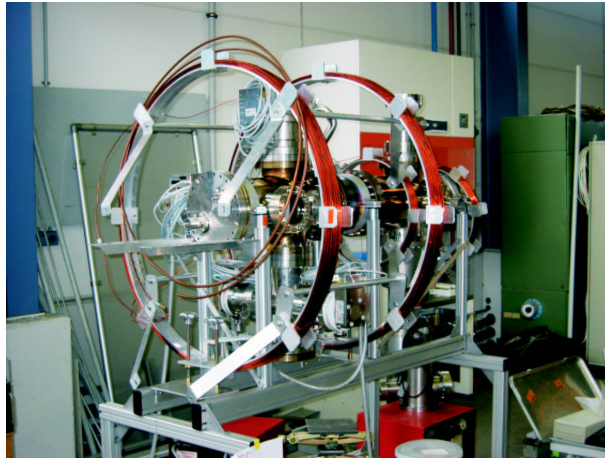


Abb. 4.11. Photo des gesamten COLTRIMS-Aufbaus.

aus der Vakuumkammer geführt.

Die besonders empfindlichen Zeitsignale werden in *Fast Amplifiern* (FA) so weit verstärkt, dass sie von einem *Constant Fraction Discriminator* (CFD) erkannt und in logische NIM-Signale umgewandelt werden können. Für die Anodensignale wird dieser Vorgang in einer, von der Firma Roentdek [42] entwickelten *Differential Linear Amplifier Trigger-Box* (DLTR-Box) durchgeführt: In dieser Box sind die Entkopplungsglieder für die einzelnen Anodensignale, sowie ein Vorverstärker und ein CFD vorhanden.

Um aus den vielen, auf den Detektoren auftreffenden Signalen die gewünschten Teilchen herauszufiltern, wird die Aufnahme an eine Bedingung geknüpft. Dieser sog. *Trigger* besteht aus einer logischen AND- und OR-Schaltung und beinhaltet in unserem Experiment das Auftreffen eines Ar^{1+} oder Ar^{2+} in einer festgelegten Flugzeit nachdem das Lasersignal eingegangen ist (gestrichelter Bereich in Abb.4.12). Damit dies möglich wird, müssen die einzelnen Signale mittels *Gate&Delay Generatoren* (G&DG) in der Zeit verschoben und in die Breite gezogen werden. Die Flugzeitsignale des Ionendetektors und des Lasersignals werden dabei in einen *Time-to-Amplitude-Converter* (TAC) kombiniert: Die Zeitspanne zwischen den zwei Signalen wird so eine analoge Signalamplitude zugewiesen.

Der verwendete LeCroy *Time-to-Digital Converter* (TDC) wird im Common-Stop-Modus betrieben: Er nimmt solange Daten auf, bis er einen Stopp durch den Trigger bekommt und schaut dann $32\mu s$ zurück in die Vergangenheit. Der Phillips TDC kann dagegen nur in einem sehr kurzen Zeitraum (Gate) Daten aufnehmen und wurde aus diesem Grund für die Anodensignale des Ionendetektors eingesetzt. Sind in der verschalteten Koinzidenz alle Bedingungen erfüllt, wird der TDC gestoppt und die Daten mittels CAMAC-Interface auf den PC übertragen.

Die gesamte Verschaltung ist in Abb.4.12 schematisch dargestellt.

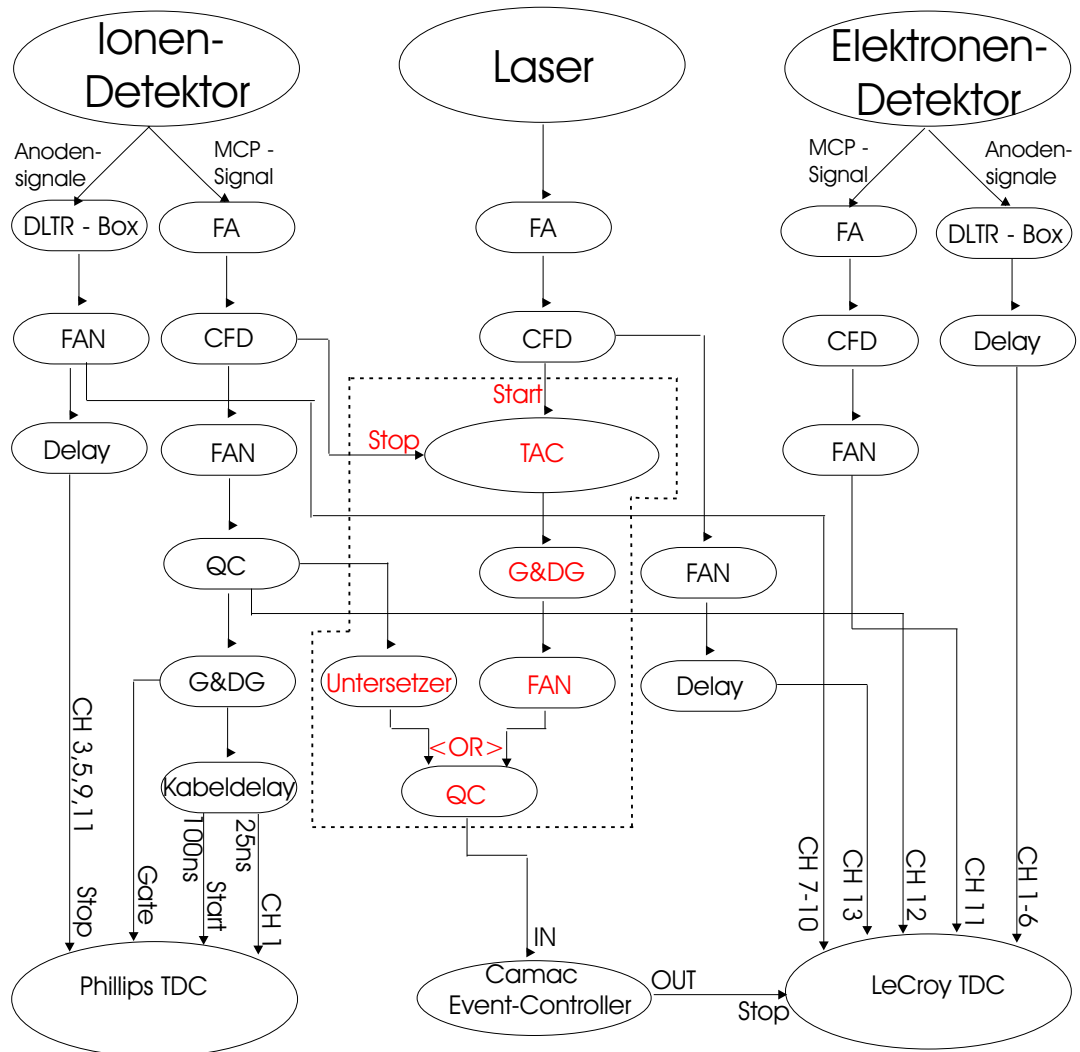


Abb. 4.12. Schaltplan der verwendeten Elektronik; der eingerahmte Bereich zeigt die Koinzidenz-Verschaltung.

4.2 Laserspezifikationen

Das verwendete Ti:Sa-Lasersystem der Gruppe von P. Corkum in Ottawa sei hier kurz vorgestellt:

- Der Oszillator wird mit einem 5W Argon Laser von Coherent gepumpt. Der Kristall selbst ist 4mm dick und erzeugt durch „Self-Modelocking“ Pulse mit einer Länge von 15fs. Die durchschnittliche Ausgangsleistung des

Oszillators liegt bei 300mW mit einer Wiederholungsrate von 80MHz. Um Dispersionen 2ter Ordnung zu vermeiden, ist zusätzlich ein Prismenpaar eingebaut (siehe Abb.3.18).

- Die aus dem Oszillator kommenden Pulse werden mit Hilfe eines Gitters (600 Drähten pro mm) im Impulsraum gestreckt. Ein weiteres Prismenpaar kontrolliert die Dispersion 4ter Ordnung.
- Der gestreckte Puls wird in einem RegA („Regenerative Amplifier“) verstärkt. Die Ausgangsleistung beträgt nach diesem Schritt ungefähr $5\mu J$ bei einer Wiederholungsrate von bis zu 100kHz.
- Mit einem weiteren Gitter wird der Puls auf 35fs komprimiert. Die Energie pro Puls liegt damit bei $3\mu J$.
- Mit einem Teleskop wird der Pulszug auf einen Strahldurchmesser von 1cm vergrößert, durch ein optisches Fenster in die COLTRIMS-Kammer geleitet und mit Hilfe eines Parabolspiegels (Fokuslänge = 5cm) auf den Gasjet fokussiert. Die gemessene Größe des „Fokuspunktes“ liegt damit bei $3\mu m$ FWHM.

Kapitel 5

Messung und Eichung

Es wurden mehrere Messungen der Doppelionisation von Argon bei unterschiedlichen Energien und Polarisationsrichtungen gemessen. Die Eichung und Auswertung der Daten erfolgte in PAW.

5.1 Messreihen

Um eine gute Statistik für Ar^{2+} -Ionen zu bekommen, muss eine Messreihe zwischen 20-30 Stunden laufen. Kleinere Schwierigkeiten ergaben sich dabei durch die Stabilität des Lasers oder Temperaturschwankungen des Kaltkopfes. Aus diesen und weiteren Gründen (u.a. auch wieder eine Überschwemmung des Laserlabors!) wurden viele Messreihen zeitweise unterbrochen; die wichtigen Parameter der Messung wie Intensität, Polarisation und Jetdichte sollte dies jedoch nicht verändert haben.

Die Laserintensität konnte für jede Messreihe durch das gemessene Verhältnis Ar^{2+}/Ar^{1+} und den Vergleich zu der kalkulierten Kurve (Abb.5.1 aus [26]) geeicht werden. Es konnte eine maximale Laserintensität von $2 \cdot 10^{14} W/cm^2$ ermittelt werden.

Mit Argon wurden folgende Doppelionisations-Messungen durchgeführt:

Laserpolarisation	Ar^{2+}/Ar^{1+}	Intensität in W/cm^2
horizontal	1.2%	$2 \cdot 10^{14}$
horizontal	1.0%	$1 \cdot 10^{14}$
horizontal	0.7%	$7 \cdot 10^{13}$
horizontal	0.6%	$6 \cdot 10^{13}$
vertikal	1.0%	$1 \cdot 10^{14}$

5.2 Eichung

Mit einer COLTRIMS-Apparatur können nur Zeiten gemessen werden. Orte, Impulse, sowie auch elektrische und magnetische Felder müssen mit Hilfe dieser

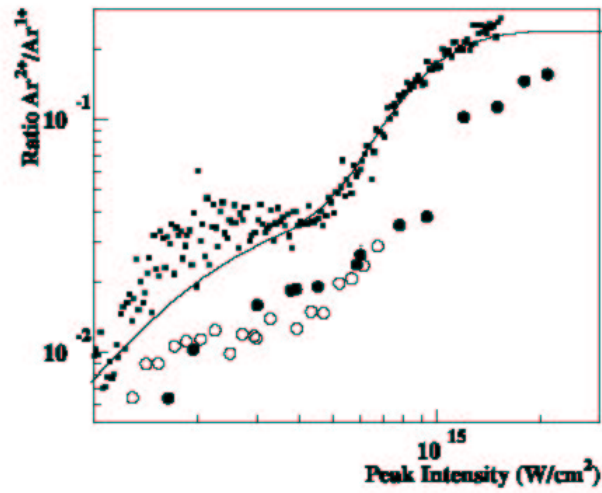


Abb. 5.1. Das Verhältnis von Ar^{2+} zu Ar^{1+} ist als Funktion der Laserintensität aufgetragen: Die durchgezogene Linie zeigt S-Matrix Rechnungen aus [32], die kleinen Kreise sind von [22], die weissen Kreise von [45], sowie die schwarzen Kreise von [26].

Zeiten berechnet werden. Die Eichung der Messreihe „horizontale Polarisation bei $Ar^{2+}/Ar^{1+} = 1.0$ “ sei hier exemplarisch kurz vorgestellt.

In den weiteren Betrachtungen spannen die Koordinaten x und y die Detektorebene auf, z zeigt in Richtung der Spektromeerachse (Abb.5.2).

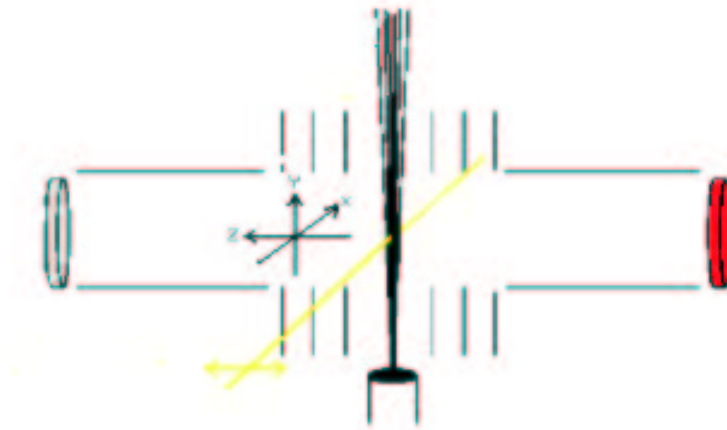


Abb. 5.2. Koordinatensystem bei horizontaler Polarisation

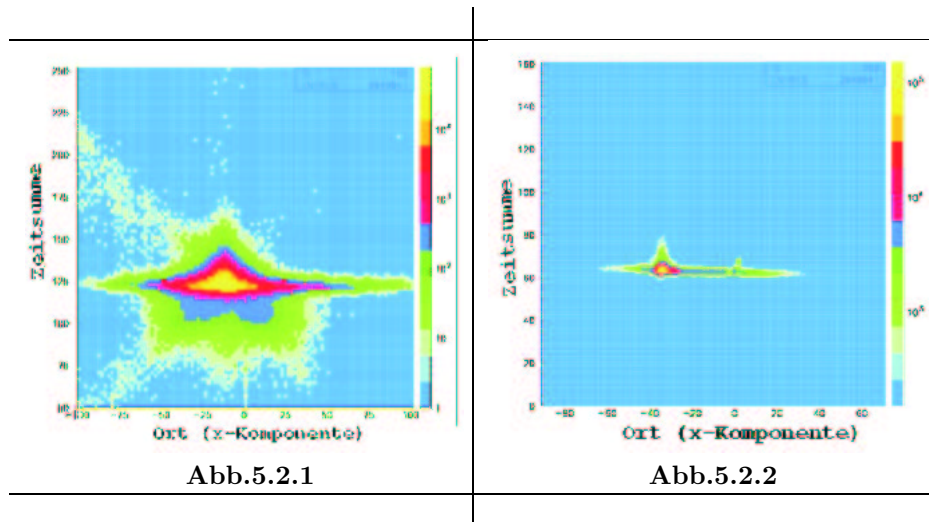
5.2.1 Flugzeit, Auftrefforte und umgebende Felder

Elektronen	Recoils
------------	---------

Zeitsumme

Für jeden Detektor erhält man ein von den MCPs kommendes Zeitsignal und für die Ortsinformation vier Signale von der Delay-Line Anode. Aus der Differenz der korrelierten Laufzeitsignale kann der Auftreffort für jeden Layer des Detektors berechnet werden. Die Summe zweier zugehöriger Signale entspricht der gesamten Laufzeit durch die Drahtebene und muss dementsprechend immer die gleiche Konstante ergeben (Zeitsumme).

Die Zeitsumme sollte von dem Auftreffort auf dem Detektor unabhängig sein. Abb.5.2.1 und Abb.5.2.2 zeigen, dass dies für Elektronen und Recoils zum größten Teil erfüllt ist.



Flugzeiten

Mit Hilfe der Flugzeit können die gemessenen Ar^{1+} - und Ar^{2+} -Ionen voneinander separiert werden. Die einfach geladenen Teilchen sind dabei nur für die weitere Eichung, wie z.B. die Berechnung des elektrischen Feldes, wichtig. Nur die um einen Faktor 100 geringeren gemessenen zweifach geladenen Argonionen sind in diesem Fall von wissenschaftlichem Interesse.

Die gemessenen Flugzeiten sind Abb.5.2.3, Abb.5.2.4 und Abb.5.2.5 zu sehen; es handelt sich dabei noch um die direkt vom LeCroy-TDC kommenden Rohdaten in der Einheit Kanäle (2 Kanäle = 1 ns):

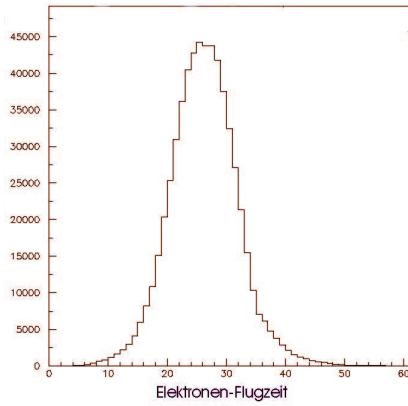


Abb.5.2.3

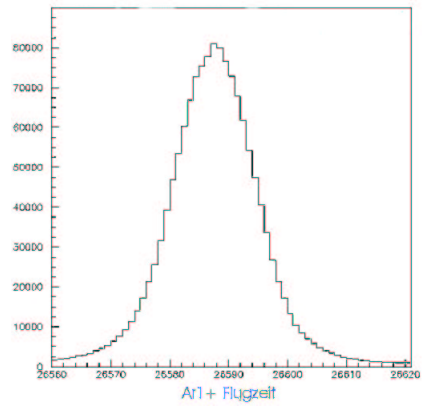


Abb.5.2.4

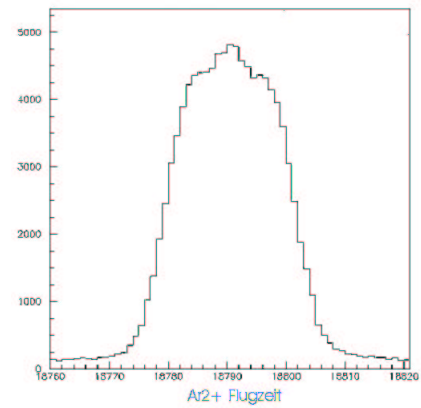


Abb.5.2.5

Die einzelnen Messreihen laufen jeweils mehrere Stunden, in denen die Parameter des Experimentes u.a. das elektrische Feld des Spektrometers nicht verändert werden dürfen. Die Konstanz des E-Feldes lässt sich mit Hilfe der Flugzeiten der Teilchen überprüfen:

Abb.5.2.6 und Abb.5.2.7 zeigen die Flugzeiten von Elektronen und Ionen relativ zum Lasersignal in Abhängigkeit von der Meßzeit:

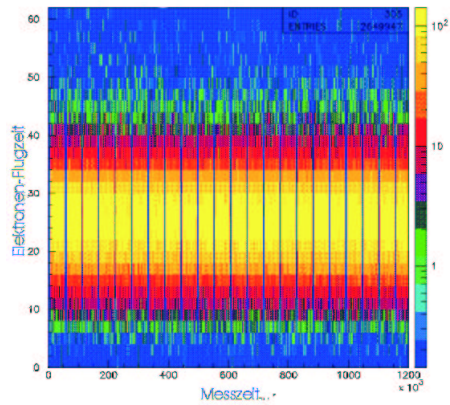


Abb.5.2.6

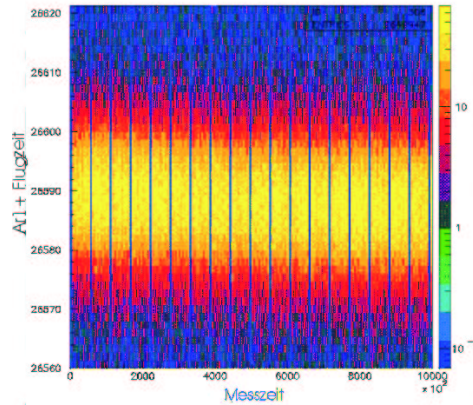


Abb.5.2.7

Abb.5.2.7 zeigt, dass die Flugzeiten der Ionen mit der Zeit wandert. Um dies zu kompensieren wurde ein *gleitender Mittelwert* der Flugzeit in die Eichung eingebaut.

Orte

Aus den Anodensignalen lassen sich jeweils zwei-dimensionale Ortsbilder der Ionen und Elektronen darstellen. Während der Messung ist es nicht möglich, die Targetzone auf die Nullpunkte der Detektoren einzujustieren, so dass die Ortsverteilungen nachträglich verschoben werden müssen. Erfüllen die Teilchen die Bedingungen *Zeitsumme* und *Flugzeit*, so ergeben sich folgende Ortsbilder:

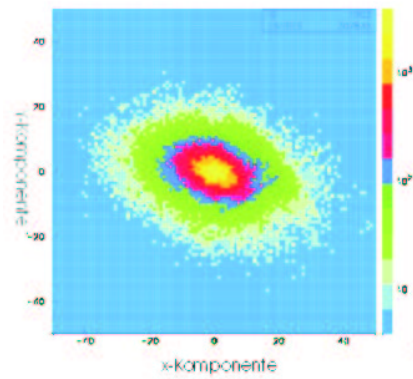


Abb.5.2.8 Ortsverteilung der Elektronen

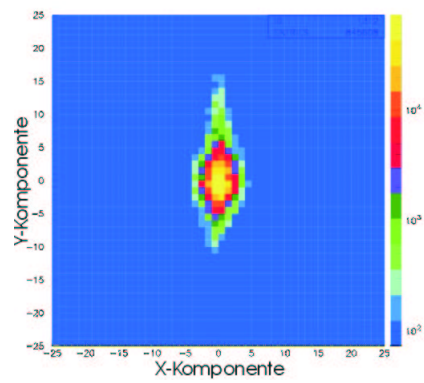


Abb.5.2.9 Ortsverteilung der Ar^{1+} -Ionen

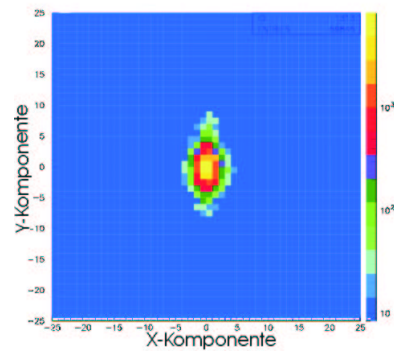


Abb.5.2.10 Ortsverteilung der Ar^{2+} -Ionen

Magnetisches Feld

Wie in Abschnitt 3.1.2 gezeigt, hängt die Gyrationperiode nur vom Magnetfeld ab; die transversale Geschwindigkeit der Teilchen zeigt sich in dem Radius der Gyration

$$(TOF)_e = n \cdot T_{Gyr}$$

mit $n = 1, 2, 3, \dots$ Trägt man den Abstand zwischen Auftreffort des Teilchens und Nullpunkt der Hexanode gegenüber der Flugzeit auf, so erhält man die, in Abb.5.2.11 zu sehenden *Wiggels*. Da der Abstand zwischen zwei Knoten genau einer Gyrationperiode T_{Gyr} entspricht, lässt sich das Magnetfeld ganz leicht bestimmen über

$$T_{Gyr} = \frac{2\pi m}{Bq}$$

und es ergibt sich ein Wert von

$$B[G] = \frac{357.2}{T_{Gyr}[ns]} = \frac{357.2}{32.8ns} = 10.9.$$

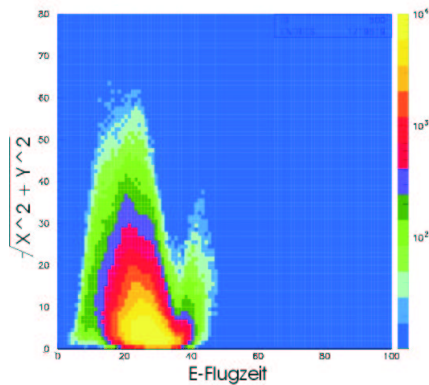


Abb.5.2.11 Wiggelspektrum

Elektrisches Feld

Die Teilchen bewegen sich im elektrischen Feld mit konstanter Beschleunigung, so dass mit Hilfe der gemessenen Recoilflugzeit (die aufgrund der längeren Flugzeit genauer als die der Elektronen ist) zurück auf das elektrische Feld und über die bekannten Widerstände auf die angelegten Spannungen im Spektrometer geschlossen werden kann. Sei x_1 die Beschleunigungsstrecke, x_2 die Drift der Recoilseite des Spektrometers (Abb.3.6), T_G die Gesamtflugzeit von Ar^+ , q die Ladung von Ar^+ und m die Masse von Argon, so gilt

$$\begin{aligned} E &= \frac{m}{qT_g^2} \left(\sqrt{2x_1} + \sqrt{\frac{x_2^2}{2x_1}} \right)^2 \\ &= \frac{m}{qT_g^2} \left(\sqrt{2 \cdot 20.05cm} + \sqrt{\frac{(45cm)^2}{2 \cdot 20.05cm}} \right)^2 \\ &= 10.65 \frac{V}{cm}. \end{aligned}$$

Zeitnullpunkt

Der genaue Zeitpunkt der Entstehung wird für spätere Impulsberechnungen benötigt. Gemessen werden allerdings nur Flugzeiten relativ zum Laserpuls und dieser wird an einer beliebigen Stelle in der Pulserzeugung ausgekoppelt und über ein in der Länge nicht genau bestimmtes Kabel in die Datenaufnahme

geleitet. Diese Verschiebung kann nur durch die gemessenen Elektronen und Recoils bestimmt werden. Es gibt zwei verschiedene Methoden:

<p>In Abb.5.2.11 ist der zweite Wiggel der Elektronen zu sehen. Rechnet man dementsprechend die zweifache Gyrationperiode von $2 \cdot 32.8ns$ zurück, ergibt sich ein Elektronen-Zeitnullpunkt von</p> $etof_0 = -26.7ns$	<p>Überprüfen lässt sich dies mit dem Recoil-Flugzeitspektrum. Zu sehen sind gleich mehrere Referenzpunkte, für die gilt</p> $t \propto \sqrt{\frac{1}{a}} \propto \sqrt{\frac{m}{q}}$ <p>d.h. das Spektrum ist eine lineare Funktion der Wurzel aus dem Masse-Ladungs Verhältnis. Die Geradengleichung kann über zwei Punkte definiert werden</p> $t = const \cdot \sqrt{\frac{m}{q}} + t_0$ <p>und es ergibt sich ein Zeitnullpunkt von</p> $rtof_0 = -27.765ns.$
--	--

5.2.2 Impulse

z-Impulse

Die Impulse in Flugzeitrichtung hängen nur von den Größen elektrisches Feld und absolute Flugzeit ab (lineare Näherung für kleine Impulse)

$$p_z = q \cdot E \cdot (t - t_0) \quad (5.1)$$

In der Einfachionisation gilt folgende Impulserhaltung

$$p_{Ph} + p_{Ar} = p_{Ar^+} + p_{e^-}, \quad (5.2)$$

so dass Recoil- gegen Elektronenimpuls aufgetragen eine Diagonale ergeben muss (Abb.5.3).

x- und y-Impulse

Die Impulse senkrecht zur Flugzeitrichtung sind abhängig von der Auslenkung auf dem Detektor und der absoluten Flugzeit.

- Für die Recoils gilt

$$p_x = m_{Ar^+} \cdot \frac{x}{absoluteTOF} \quad (5.3)$$

$$p_y = m_{Ar^+} \cdot \frac{y}{absoluteTOF}. \quad (5.4)$$

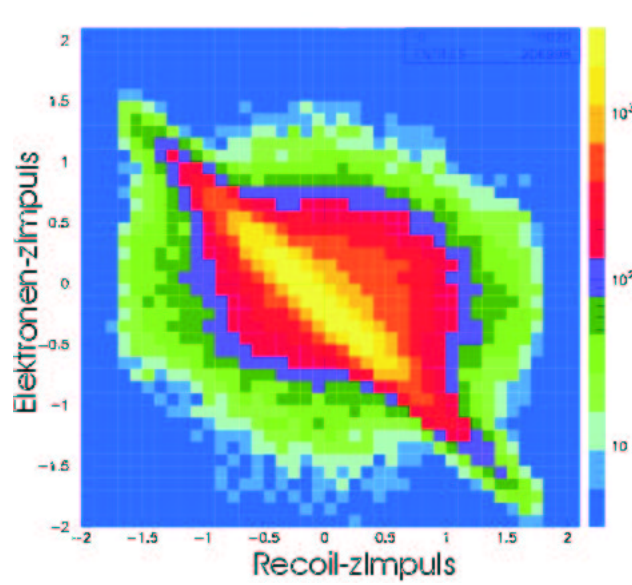


Abb. 5.3. Recoilimpuls gegen Elektronenimpuls aufgetragen; aufgrund Impulserhaltung muss sich eine Diagonale ergeben.

- Die Elektronen benötigen aufgrund der Schraubenbahn eine genauere Betrachtung: Der gesamte Transversalimpuls ergibt sich als Tangente an den von der Gyration beschriebenen Kreis. Betrachtet wird der Abstand R zwischen dem Auftreffort und dem Nullpunkt mit dem eingeschlossenen Winkel α (siehe Abb.5.4)

$$\left| \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right| = \frac{R/2}{r_{Gyr}}. \quad (5.5)$$

Aus dem gleichschenkligen Dreieck folgt

$$\begin{aligned} r_{Gyr} &= \frac{R}{2 \left| \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right|} = \frac{R}{2 \left| \sqrt{\frac{1-\cos(\alpha)}{2}} \right|} = \frac{R}{\sqrt{2-2\cos(\alpha)}} \\ &= \sqrt{\frac{x^2 + y^2}{2-2\cos(\alpha)}}. \end{aligned} \quad (5.6)$$

Aus $\frac{mv^2}{r_{Gyr}} = q\vec{v} \times \vec{B}$ folgt für den gesamten Transversalimpuls

$$|p_{\perp}| = r_{Gyr} \cdot q \cdot B = q \cdot B \cdot \sqrt{\frac{x^2 + y^2}{2-2\cos(\alpha)}}. \quad (5.7)$$

Die Aufspaltung von p_{\perp} in x- und y-Impulse geschieht mit Hilfe einer Drehmatrix

$$\vec{e} = \begin{pmatrix} e_x \\ e_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha/2) & -\sin(\alpha/2) \\ \sin(\alpha/2) & \cos(\alpha/2) \end{pmatrix} \cdot \frac{1}{\sqrt{x^2 + y^2}} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \quad (5.8)$$

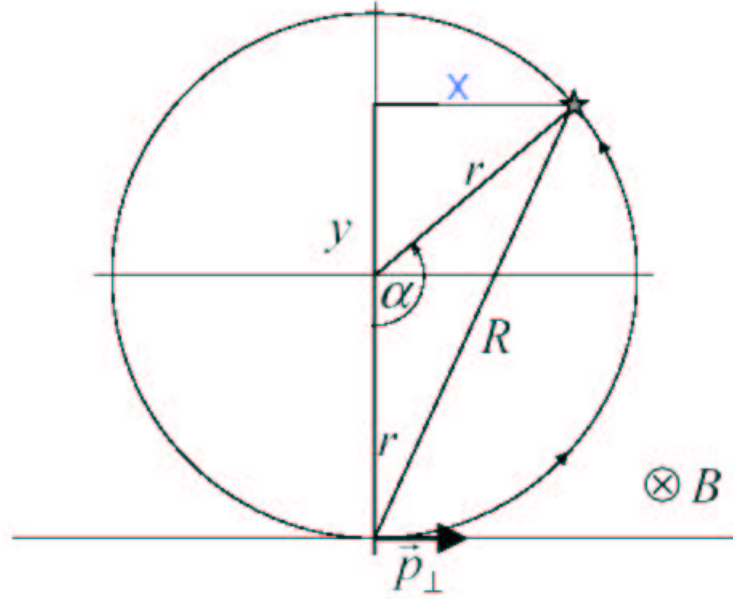


Abb. 5.4. Die Projektion der Trajektorien auf die Detektorebene.

Daraus folgt für die einzelnen Impulse

$$p_x = \left(\cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \cdot x - \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \cdot y \right) \cdot \frac{qB}{\sqrt{2 - 2\cos(\alpha)}} \quad (5.9)$$

$$\vec{p} = \vec{e}|p| \Rightarrow$$

$$p_y = \left(\sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \cdot x + \cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) \cdot y \right) \cdot \frac{qB}{\sqrt{2 - 2\cos(\alpha)}} \quad (5.10)$$

Impulse des zweiten Elektrons

Das zweite Elektron konnte aufgrund des Fehlens des dritten Layers der Hexanode nicht gemessen werden und muss so über die Erhaltung des Gesamtimpulses im System bestimmt werden. Bei einer Vernachlässigung des Photonenimpulses gilt für alle Raumrichtungen

$$\vec{p}_{e,2} = -\vec{p}_{Ar^{2+}} - \vec{p}_{e,1}. \quad (5.11)$$

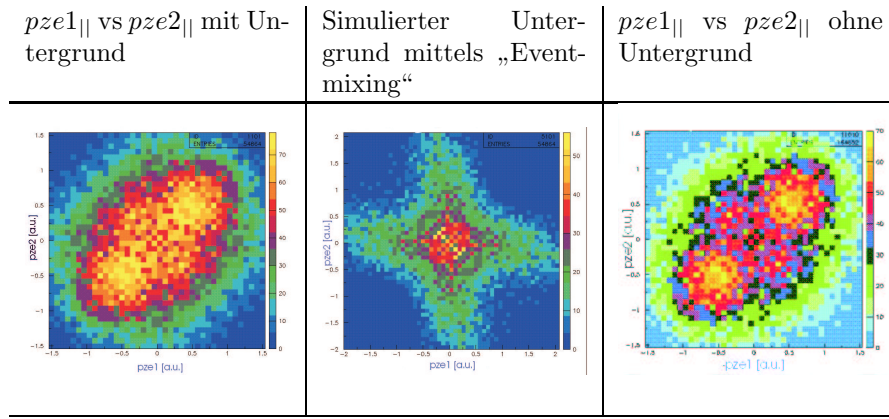
5.2.3 Untergrund

Trotz den bisherigen Bedingungen von Zeitsumme, Flugzeit und Ort befindet sich ein nicht vernachlässigbarer Anteil von Untergrund in den Spektren.

Eine grobe Abschätzung gibt die Eventskala in Abb.5.3. Alle zusammengehörenden Events sollten sich auf der Diagonalen befinden; die umliegenden Datenpunkte können keinem eindeutigen Ereignis zugeordnet werden. Der Untergrund beträgt bei dieser Messreihe ca. 25%.

Eine genauere und in dieser Arbeit verwendete Methode basiert auf dem *Erstellen* eines Untergrundbildes: Um sicher zu gehen, dass es sich wirklich um ein dem Ar^{1+} nicht zugeordnetes Elektron handelt, werden Daten aus zwei verschiedenen Events kombiniert. D.h. das Elektron aus dem n -ten Event wird *gespeichert* und dann mit dem Ar^{1+} aus dem $(n+1)$ -ten Event zusammen dargestellt. Hierbei handelt es sich um nachgewiesene Elektronen und Ionen, die im gleichen Laserpuls, jedoch aus zwei verschiedenen Atomen entstanden sind.

Als Beispiel sind in den nachfolgenden Bilder die Impulse parallel zur Polarisationsachse des ersten und zweiten Elektrons bei einer Intensität von $100TW/cm^2$ gegeneinander aufgetragen:



Kapitel 6

Ergebnisse und Interpretation

Frühere Experimente zeigen, dass der Rückstreuprozeß in der Doppelionisation parallel zur Laserpolarisation durch das optischen Feld gesteuert wird; die Elektronen werden in die gleiche Hemisphäre emittiert. Die Energieverteilung zwischen den Elektronen zeigt jedoch auch eine Abhängigkeit von der Coulomb-Wechselwirkung im Kontinuum.

Diese Arbeit konzentriert sich auf zwei Sichtweisen des Rückstreuprozesses :

i) Impulse der Elektronen und Ionen in der Richtung parallel zum elektrischen Feld, wobei das „Fehlen“ der Schwelle, intensitätsabhängiger Phänomene und die Aufteilung in Stoß- und Anregungsionisation diskutiert werden

ii) Impulse der Elektronen und Ionen senkrecht zum elektrischen Feld, wobei die Drei-Körper-Wechselwirkung des Rückstreuprozesses im Vordergrund steht.

6.1 Vorherige Ergebnisse

Die Frankfurter Gruppe hat früh angefangen, Atome und Moleküle in starken Laserfeldern zu untersuchen. Die Experimente unterscheiden sich im prinzipiellen Aufbau kaum, es wurden Detektorauflösung und Laserintensität verbessert, so dass eine Beobachtung des Reaktionsvorganges aus mehreren Sichtweisen möglich wurde.

Zu dieser Arbeit gibt es hauptsächlich zwei Vorgänger:

6.1.1 Marburg-Messung 1999

In diesem Experiment wurde die Doppelionisation von Helium mit einem Ti:Sa-Lasersystem (800nm, 220fs, 1kHz) aus der Gruppe um Harald Giessen in Marburg untersucht [30]. Die Ergebnisse zeigen einen Nachweis für den nicht-sequentiellen Vorgang bei der Doppelionisation in einem bestimmten Intensitätsbereich und verifizieren das Rückstreumodell als den dazugehörigen Prozess. Abb.6.1 zeigt einen Vergleich der Impulsverteilungen bei einfach und doppelt geladenen Ionen.

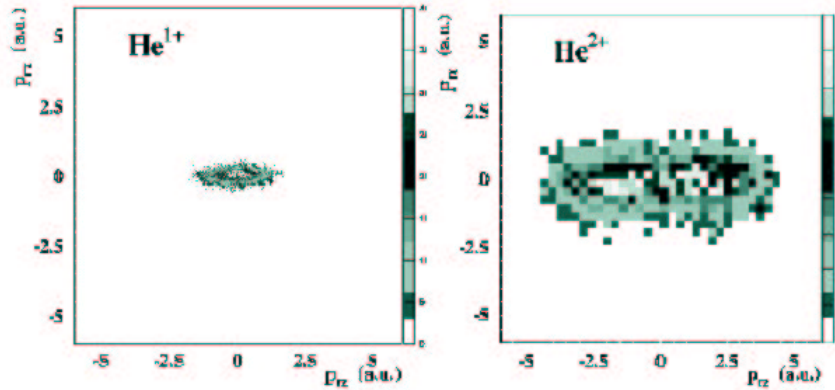


Abb. 6.1. Impulsverteilung der einfach (links) und doppelt geladenen Ionen (rechts).

Wie man deutlich sieht, besitzen die Ionen bei der Doppelionisation eine viel grössere kinetische Energie, die nicht von einem sequentiellen Prozeß stammen kann. Das Minimum bei Null deutet an, dass eine back-zu-back Emission eher unwahrscheinlich ist und beide Elektronen im Endzustand parallel zueinander liegen. Die gemessenen Impulse von bis zu $4\sqrt{U_p}$ entsprechen der maximal aufnehmbaren Energie, die klassisch im Photonenfeld erreicht werden kann.

Abb.2.15 (im Theorie-Teil) zeigt die longitudinale Impulskomponente beider Elektronen, wobei über die transversale Komponente integriert wurde. Die Maxima im ersten und dritten Quadranten zeigen eine Gleichverteilung der Impulse zwischen den Elektronen. Als Begründung für dieses „energy-sharing“ wurde der Rescattering-Prozess herangezogen: Das erste Elektron wird durch das Wiedertreffen auf das Ion stark abgebremst und gibt den größten Teil seiner Energie für die Ionisation des zweiten Elektrons ab. Die kinetische Energie beider Elektronen wird so gleichverteilt und hängt nur von der Phase des Laserfeldes zur Rückstreuzeit ab.

Fazit: Die gemessene Elektronenverteilung ist keine Eigenschaft des Atoms an sich, sondern wird erst durch die Kopplung des optischen Feldes mit dem Atom erreicht. Die Gleichverteilung der Energie auf beide Elektronen ist im Rückstreu-prozess der Doppelionisation verankert.

Die Elektron-Ortsauflösung des Experimentes erlaubte es jedoch nicht, einzelne Impulse in transversaler Richtung zu bestimmen.

6.1.2 Frankfurt-Messung 2000/2001

In dieser Messung sollten die Ergebnisse aus Marburg um die transversale Impulskomponente erweitert werden. Dazu wurde das Ti:Sa-Lasersystem der Gruppe Roskos in Frankfurt mit 1kHz, 150fs und 780nm verwendet. In der Marburg-Messung musste aufgrund schlechter Auflösung stets über die ganze transversale Komponente integriert werden. Das Ergebnis aus der Marburg-Messung sollte in dieser Messung durch weitere Bedingungen auf die Transversalrichtung unter-

sucht werden.

In Abb.2.17 (im Theorie-Teil) sind die Ergebnisse der Frankfurt-Messung zu sehen. Aufgetragen sind die longitudinalen Impulskomponenten beider Elektronen mit zusätzlichen Bedingungen auf den Transversalimpuls (genauer siehe Abschnitt 2.5.3). Erklärt wird dies in [2] durch Elektron-Elektron-Abstoßung: Fliegen beide Elektronen parallel zueinander, muss aufgrund der Coulomb-Abstoßung eine transversale Komponente zwischen ihnen existieren und so einen Winkel zwischen den beiden Flugbahnen bilden (Teilbild d). Wird ein transversaler Impuls von $< 0.1 a.u.$ gefordert, können dagegen beide Elektronen nicht die gleiche Geschwindigkeit aufweisen (Teilbild a).

Fazit: Die Energieverteilung zwischen den Elektronen kann nicht allein durch den Rückstreu-Prozess erklärt werden. Eine weitere wichtige Rolle scheint die Coulomb-Abstoßung der schon im Kontinuum befindlichen Elektronen zu spielen. Nicht erklärbar ist die, in den Teilbildern c und d noch immer beachtliche Anzahl von um die Null verteilten Elektronen.

Die Messung lieferte noch keine vollständige Beschreibung des Drei-Körper-Problems, da das zweite Elektron durch Impulserhaltung bestimmt werden musste. Weiterhin unbeantwortet bleibt die Frage nach dem Einfluss des Laserfeldes auf den Reaktionsprozess.

6.2 Kanada-Ergebnisse - Longitudinale Polarisation

6.2.1 Nichtsequentielle Doppelionisation unterhalb der Schwelle

In Kapitel 2 wurde gezeigt, dass sich die nichtsequentielle Doppelionisation qualitativ gut mit dem Rückstreumodell beschreiben lässt. In Abhängigkeit von der Rückkehrenergie wird das zweite Elektron in einen angeregten Zustand oder ins Kontinuum gehoben. Bei beiden Prozessen handelt es sich dabei um eine inelastische Streuung im Coulomb- und Laserfeld, wobei ein zweites Elektron freigesetzt wird. Welchen Einfluß die beiden Felder auf diesen Prozeß ausüben, soll hier genauer untersucht werden:

Nach der klassischen Analyse des Rescattering-Modells kann das Elektron mit einer maximalen Energie von $3.17 U_p$ auf das Ion treffen. Fällt die maximale Rückkehrenergie unter die Ionisationsschwelle des einfachgeladenen Ions

$$E_{kin}^{max} = 3.17 \cdot U_p < I_p^+ \quad (6.1)$$

sollte die Rate der Doppelionisation einen „Cut-Off“ aufweisen.

Abb.6.2 zeigt das Verhältnis von doppelt zu einfach geladenen Ionen (durchgezogene Linie), sowie die auf dem Rückstreumodell basierende Theorie (gestrichelte Linie) [50] in Abhängigkeit von der Intensität. Beide weisen einen scharfen Abfall für die doppelt ionisierten Teilchen (in diesem Fall Helium) auf. Im Gegensatz dazu zeigen die experimentellen Daten (Kreise) beim Überschreiten der Schwelle keine abrupte Veränderung.

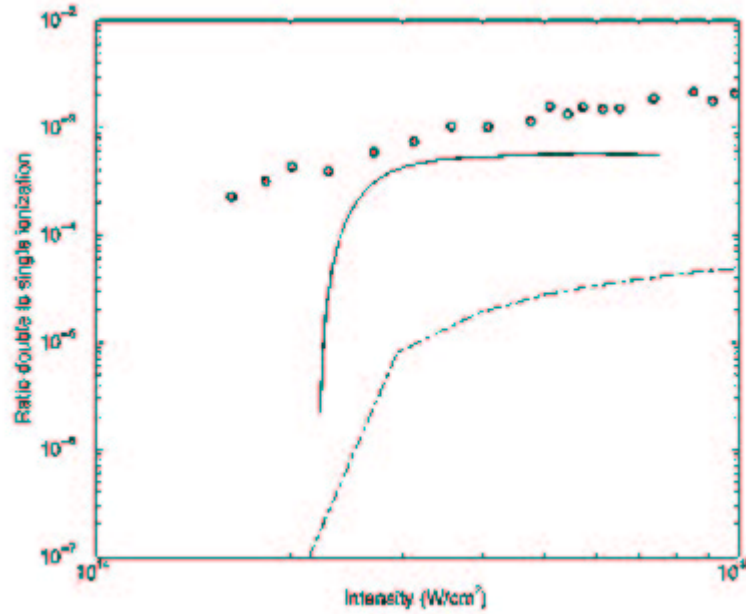


Abb. 6.2. Das Ratio von doppelt zu einfach geladenen Ionen in Abhängigkeit von der Intensität aus [49].

Vergleich von Ionen- und Elektronen-Impulsverteilungen

Ar^{2+} -Impulsverteilungen sind aufgrund der Impulserhaltung äquivalent zu den Summenimpulsverteilungen der beiden Photoelektronen

$$p_{Ar^{2+}} = p_{e,1} + p_{e,2}. \quad (6.2)$$

Gemessen wurde bei den folgenden vier Intensitäten:

I [TW/cm ²]	U_p [eV]	E_{kin}^{max} [eV]	$E_{kin}^{max} - I_p^{Ar+}$ [eV]
120	7.17	22.73	-4.87
100	5.98	18.96	-8.64
70	4.18	13.25	-14.35
60	3.59	11.38	-16.22

Der erste angeregte Zustand von Argon liegt bei 15.7 eV, die Ionisationsschwelle bei 27.6 eV. Bei allen vier Messreihen sollte demnach die Rückkehrenergie des ersten Elektrons zu klein sein, um das zweite Elektron direkt zu ionisieren. Die letzten zwei Rückkehrenergien sollten sogar für die Anregung von Argon nicht ausreichen.

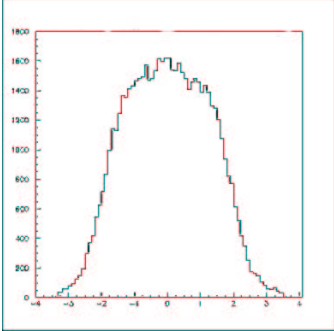
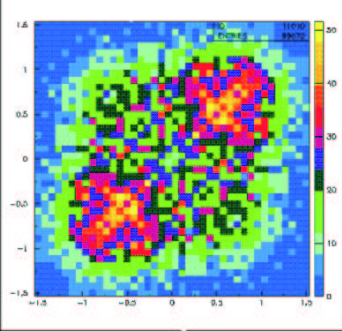
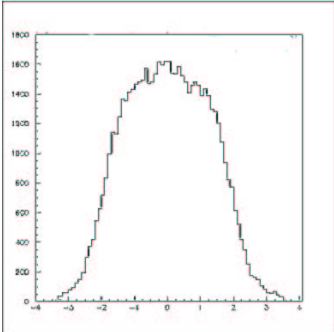
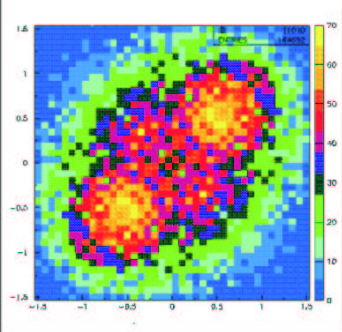
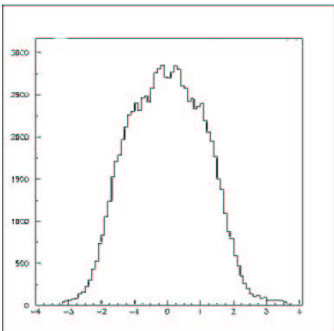
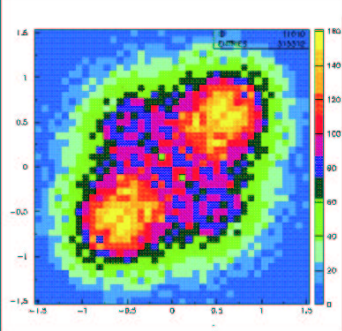
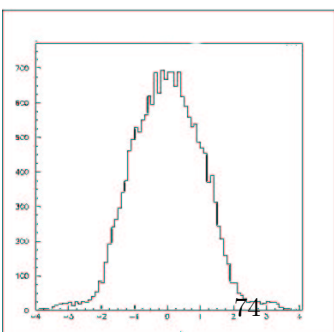
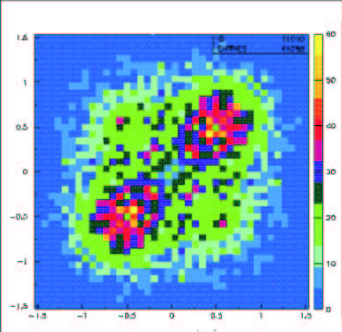
Abb.6.2.1.(a-d) zeigen die gemessenen Ar^{2+} -Impulsverteilungen: Die für die nichtsequentielle Doppelionisation erwartete Doppelpeak-Struktur bleibt aus; zu sehen ist eine Verteilung um Null. Es scheint, entsprechend den niedrigen

Energien, zumindest keine dominante direkte Ionisation via (e,2e) gegeben zu haben.

Die dazugehörigen Elektronen sind in den nebenstehenden Abb.6.2.1.(e-h) zu sehen; dabei ist der longitudinale Impuls des ersten Elektrons (x-Achse) gegen den longitudinalen Impuls des zweiten Elektrons (y-Achse) aufgetragen: Im Gegensatz zu den Ar^{2+} -Ionen ist die Elektronenkorrelation bei allen Energien zu beobachten! Beide Elektronen gehen mit großer Wahrscheinlichkeit in die gleiche Hemisphäre und besitzen im Endzustand den gleichen Impuls.

Eine Erklärung für die gemessenen Daten liegt in der „falschen“ Kalkulation des Schwellenwertes. Im Rückstreu-Modell wird die Streuung des ersten Elektrons mit dem Ion als „reiner“ (e,2e)-Stoß im feldfreien Raum behandelt. Wird ein zweites Elektron von seinem ursprünglichen Zustand in einen angeregten Zustand gehoben, so ist genau die Energiedifferenz zwischen diesen beiden Zuständen nötig. Wie sich allerdings ein anwesendes elektrisches Feld auf diesen inelastischen Streuprozess auswirkt, ist bis heute nicht genau geklärt. Das zurückkehrende Elektron wird sicherlich ein, durch das Laserfeld verändertes Potential des Ions vorfinden. Sobald die Energie des kombinierten Potentials kleiner als Null wird, kann das zweite Elektron auch mit einer Energie kleiner I_p^{Ar+} ionisiert werden.

Das Fehlen der Doppelpeakstruktur wird dem zusätzlichen Mechanismus der Anregung mit anschließender Feldionisation zugeschrieben. Dieser Punkt wird in Abschnitt 6.2.3 noch genauer untersucht werden.

Intensität	Ar^{2+} -Impulsverteilung in [a.u.]	$pze1_{ }$ vs $pze2_{ }$ in [a.u.]
$120 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.2.1.a</p>	 <p>Abb.6.2.1.e</p>
$100 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.2.1.b</p>	 <p>Abb.6.2.1.f</p>
$70 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.2.1.c</p>	 <p>Abb.6.2.1.g</p>
$60 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.2.1.d</p>	 <p>Abb.6.2.1.h</p>

Die maximale Absenkung des Ionisationspotentials ΔI_p in einem Laserfeld der Intensität I lässt sich mit dem „Over-the-barrier-ionisation“ Modell [51] berechnen

$$I_{OTBI}[W/cm^2] = \frac{\pi^2 c e^3 (\Delta I_p)^4}{2 Z^2 e^6} = 4 \cdot 10^9 \cdot (\Delta I_p [eV])^4 Z^{-2} \quad (6.3)$$

wobei Z die Ladung des Atoms ist. Die maximale Absenkung bei den, von uns gemessenen Intensitäten zeigt sich in der nachfolgenden Tabelle:

$I [TW/cm^2]$	$\Delta I_p^{Ar+} [eV]$	$I_p^{Ar+} = 27.6 - \Delta I_p^{Ar+} [eV]$	$E_{kin}^{max} - I_p^{Ar+} [eV]$
120	18.61	8.99	13.74
100	17.78	9.82	9.14
70	16.27	11.33	1.92
60	15.65	11.95	-0.57

Bei den drei höchsten Intensitäten zeigt sich, dass durch eine maximale Absenkung des Coulomb-Potentials die direkte Ionisation des zweiten Elektrons möglich geworden ist. Dagegen reicht bei einer Intensität von $60 TW/cm^2$ auch die maximale Absenkung nicht aus, um ein noch gebundenes Elektron des Ar^{1+} -Ions zu ionisieren. Eine genauere Analyse zur Absenkung der Ionisationsschwelle findet sich in Abschnitt 6.2.3.

In Abb.6.2.1.h ist jedoch weiterhin die, für die nicht-sequentielle Doppelionisation charakteristische Impulsverteilung der Elektronen zu sehen; die beiden Maxima können auf einen (e,2e)-Stoß zurückgeführt werden (siehe Abschnitt 6.2.3). Da allein die Absenkung der Ionisationsschwelle durch das Laserfeld bei dieser Intensität die direkte Ionisation nicht erklären kann, muss hier ein weiterer „Effekt“ eine Rolle spielen.

Fazit: Das Laserfeld beeinflusst den inelastischen Streuprozess zwischen dem zurückkehrenden Elektron mit dem Ion und senkt u.a. die Schwelle für den nichtsequentiellen Doppelionisationsprozess. Bei einer Intensität von $60 TW/cm^2$ sollte jedoch die maximale Rückkehrenergie des ersten Elektrons nicht ausreichen, um ein noch gebundenes Elektron über die abgesenkte Ionisationsschwelle zu heben. Da eine direkte Ionisation des zweiten Elektrons weiterhin beobachtet wird, muss ein weiterer Prozess den (e,2e)-Stoß unterstützen.

6.2.2 Nichtsequentielle Doppelionisation in Abhängigkeit von der Intensität

Die Rückkehrenergie des ersten Elektrons ist von der Phase des Laserfeldes zum Zeitpunkt der Ionisation abhängig. Die ponderomotive Energie U_p beschreibt die Oszillation durch

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad (6.4)$$

Mit

$$E_0 [V/cm] = \sqrt{\frac{2I}{c\epsilon_0}} \approx 27.45 \sqrt{I [W/cm^2]}$$

ergibt sich

$$U_p = 9.338 \cdot 10^{-20} I [W/cm^2] \lambda [nm]^2. \quad (6.5)$$

Die von dem Teilchen im Laserfeld maximal aufzunehmende Energie ist demnach von der Intensität abhängig. Ergo, die in Abb.6.2.1.(e-h) zu sehenden Maxima sollten sich bei steigender Intensität zu größeren Impulsen hinbewegen.

Elektronen-Summenimpulse

Um eine Verschiebung der Maxima genauer untersuchen zu können, werden die Bilder aus Abb.6.2.1.(a-d) auf die p(e1)-Achse projiziert:

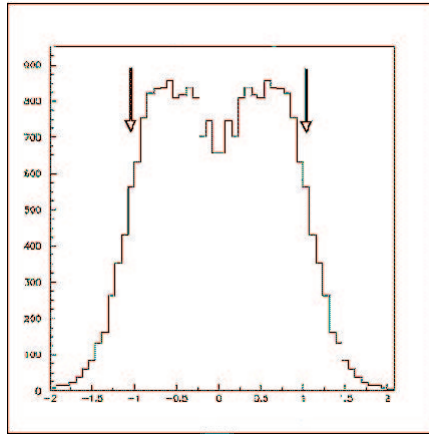


Abb.6.2.2.a $120 \cdot TW/cm^2$

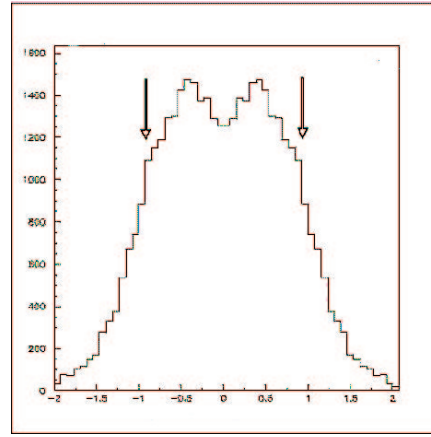


Abb.6.2.2.b $100 \cdot TW/cm^2$

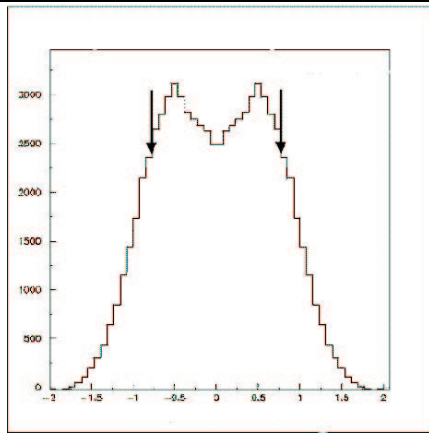


Abb.6.2.2.c $70 \cdot TW/cm^2$

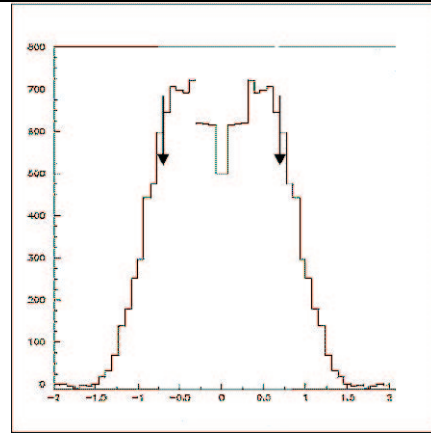


Abb.6.2.2.d $60 \cdot TW/cm^2$

Zusätzlich wurde in den Abb.6.2.2.(a-d) die, den Intensitäten zugehörigen maximalen Driftimpulse von $2\sqrt{U_p}$ als Pfeile eingetragen.

Die zu erwartete Größenveränderung sowie eine Verschiebung der Maxima können in den Messergebnissen sehr gut beobachtet werden. So verringert sich z.B. der maximale Impuls zwischen $120 TW/cm^2$ und $60 TW/cm^2$ auf fast die Hälfte. Die im Laserfeld aufgenommenen Driftimpulse nehmen bei geringeren Intensitäten kleinere Werte an. Im Vergleich zur gesamten Elektronensummenver-

teilung verschieben sich die eingezeichneten Pfeile jedoch in Richtung Maxima. Während bei relativ großen Intensitäten der Endimpuls eines Elektrons hauptsächlich aus dem im Laserfeld aufgenommen Driftimpuls besteht (Abb.6.2.2.a), scheint bei kleineren Intensitäten der aus dem Rückstreu-Prozess stammende Anfangsimpuls eine Rolle zu spielen (Abb.6.2.2.d).

„Form“ der Maxima

In Abhängigkeit von der Intensität scheint sich auch die „Form“ der Maxima zu ändern. Bei 120 TW/cm^2 muss aufgrund kürzerer Messzeit eine schlechtere Statistik berücksichtigt werden. In Abb.6.3.e sieht man trotzdem eine deutliche Neigung zu kreisförmigen Maxima. Dies wird durch die nächste Intensität bei 100 TW/cm^2 nochmals bestätigt. Der Übergang zu den 70 TW/cm^2 zeigt eine Veränderung: Die Maxima besitzen eine eher längliche, schmale Form in Richtung der Laserpolarisationsachse. Die Ergebnisse bei 60 TW/cm^2 bestätigen diese Veränderung.

Eine Erklärung für das schnellere Abfallen der experimentellen Daten in dieser Richtung bieten die unterschiedlichen Arten von Wechselwirkungsprozessen: Entlang der Polarisationsachse wird die Bewegung der Elektronen hauptsächlich durch das Laserfeld bestimmt. Senkrecht dazu wirken nur die gegenseitigen Coulombfelder auf die Elektronen.

Die deutliche „Vorzugsrichtung“ des Impulses in Richtung der Polarisationsachse unterstreicht die dominierende Wechselwirkung des Laserfeldes gegenüber der schwächeren Coulomb-Wechselwirkung. Nach Abb.6.3.(e-h) scheint sich dieser Effekt bei niedrigeren Intensitäten noch weiter auszuprägen.

Fazit: Bei höheren Intensitäten wird der Endimpuls durch den im Laserfeld aufgenommenen Driftimpuls dominiert; dagegen scheint bei geringeren Intensitäten der, durch die Elektronenkorrelation und den inelastische Streuprozess bestimmte Anfangsimpuls eine Rolle zu spielen.

Die *Form* der Maxima widerspricht dem: Hierbei zeigen die hohen Intensitäten durch eine kreisrunde Form eine Gleichverteilung zwischen der Wechselwirkung mit dem Laser in Polarisationsrichtung und der Coulomb-Wechselwirkung in der dazu senkrechten Ebene. Geht man zu niedrigeren Intensitäten, baut sich eine „Vorzugsrichtung“ entlang der Polarisationsachse aus, es zeigen sich eher längliche Maxima.

Dieser Widerspruch lässt sich im Rahmen des klassischen Rückstreu-Modells nicht lösen. Allerdings sind auch die heute verfügbaren quantenmechanischen Rechnungen außerstande, die hier diskutierten Details der Impulsverteilungen zu reproduzieren.

6.2.3 Separation von Anregung und (e,2e)-Stoß

Schon im Theorie-Teil dieser Arbeit ist die Aufspaltung des Rückstreu-Modells diskutiert worden. Das zurückkehrende Elektron gibt einen Teil seiner Energie an ein noch gebundenes Elektron ab. Das zweite Elektron kann nun durch zwei unterschiedliche Prozesse ionisiert werden:

- Die Energie ist größer als die Ionisationsenergie des einfach geladenen Ions, das zweite Elektron wird direkt ionisiert.

- Die Energie ist kleiner als die Ionisationsenergie, es kommt zur Anregung des Ions. Das zweite Elektron wird zu einem späteren Zeitpunkt feldionisiert; die Emissionsrichtung wird damit durch die Phasenlage des Lasers zum Zeitpunkt der Feldionisation bestimmt.

Aufgrund des unterschiedlichen Ionisationsvorganges lassen sich in einem kinematisch vollständigen Experiment beide Mechanismen qualitativ voneinander trennen. Dazu werden jedoch einige vorherige Überlegungen benötigt.

Klassisch erlaubter Bereich für Rescattering-Modell

Die erlaubten Impulsbereiche für den (e,2e)-Stoß können mit Hilfe des klassischen Rückstreumodells abgeleitet werden. Befindet sich ein ungebundenes Elektron im linear polarisierten elektrischen Feld $E(t)$ mit der Frequenz ω

$$E(t) = E_0(t) \cos \omega t \quad (6.6)$$

folgt seine Bahn der Bewegungsgleichung $m\ddot{x}(t) = eE(t)$. Das Elektron wird zum Zeitpunkt $t = t_0$ mit Impuls Null erzeugt. Zur Zeit $t_1 > t_0$ ist die Geschwindigkeit des Elektrons

$$\dot{x}(t_1) = v(t_1) = -\frac{eE_0}{m\omega} (\sin \omega t_1 - \sin \omega t_0) \quad (6.7)$$

und sein Ort zur Zeit t_1 ist gegeben durch

$$x(t_1) = -\frac{eE_0}{m\omega^2} (\cos \omega t_1 - \cos \omega t_0 + \omega t_1 \cdot \sin \omega t_0 - \omega t_0 \cdot \sin \omega t_0). \quad (6.8)$$

Die Anfangsbedingungen seien so gewählt, dass das Elektron seine Bahn zum Zeitpunkt t_0 am Ort $x(t_0) = 0$ mit der Geschwindigkeit $\dot{x}(t_0) = 0$ beginnt. Gl.6.7 liefert die Größe der Zitteramplitude des Elektrons im Feld

$$\alpha = \frac{eE_0}{m\omega^2} \quad (6.9)$$

Für eine Intensität von 100 TW/cm^2 ergibt sich ein α von 16 a.u., d.h. sie ist schon wesentlich größer als die Ausdehnung eines Atoms.

Voraussetzung für eine anschließende Wechselwirkung mit dem Ionenrumpf ist, dass die vom Feld getriebene Bewegung des Elektrons zum Ion zurückführt (d.h. $x(t_1) = 0$). In einem inelastischen Stoß kann ein weiteres Elektron aus der Elektronenhülle gelöst werden. Ist der Laserpuls beendet, d.h. $t \rightarrow \infty$, geht die Zitterenergie gegen Null und die Endzustände der Elektronen werden nur noch durch die Driftgeschwindigkeit bestimmt

$$p^{final}(t_0) = \frac{q}{m} E_0(t_0) \cos \omega t_0 \quad . \quad (6.10)$$

Daraus ergibt sich ein maximaler Driftimpuls von

$$p_{max}^{final} = \frac{q}{m} E_{max} = 2q\sqrt{U_p} \quad . \quad (6.11)$$

Das Elektron wird demnach allein durch die kinetische Energie der Driftbewegung ins Kontinuum gebracht, während die Zitterenergie mit der Absenkung

der Ionisationsschwelle verbunden werden kann:

Die Überlagerung von Coulomb- und Laserfeld ergeben folgendes Potential (siehe Abb.2.3)

$$V(x) = -\frac{Z}{|x|} + Ex \quad (6.12)$$

mit einem Maximum bei

$$x = -\sqrt{\frac{Z}{|E|}}.$$

Daraus ergibt sich eine Absenkung (in a.u.) der Ar^{1+} -Ionisationsschwelle bei der Laserphase ωt_1 um

$$-2\sqrt{2|E_0 \cos \omega t_1|}. \quad (6.13)$$

Mit Hilfe des klassischen Rückstreu-Modells und unter Berücksichtigung der dynamisch abgesenkten Potentialbarrieren in Abhängigkeit von der Rückkehrphase des ersten Elektrons ergeben sich für die direkte Ionisation die folgenden klassisch erlaubten Bereiche des Impulsraumes. Aufgetragen ist der longitudinale Impuls des ersten Elektrons (x-Achse) gegen den longitudinalen Impuls des zweiten Elektrons (y-Achse):

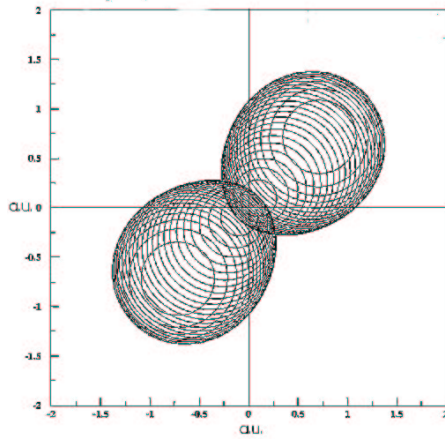


Abb.6.2.3.a $120 \cdot TW/cm^2$

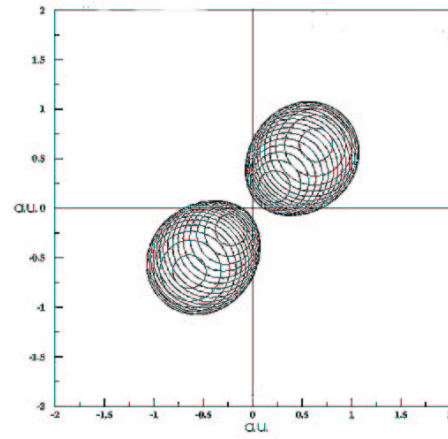


Abb.6.2.3.b $100 \cdot TW/cm^2$

Nach dem Stoß werden beide Elektronen zur gleichen Zeit in das Laserfeld freigesetzt, so dass sie den gleichen Driftimpuls erhalten und in die jeweils gleiche Hemisphäre emittiert werden. Die Elektronen sind demnach nur im ersten und dritten Quadranten des Impulsraumes zu beobachten, die Raumsymmetrie ist gebrochen.

Für die beiden niedrigen Intensitäten von $70TW/cm^2$ und $60TW/cm^2$ ergeben sich allein durch ein Absenken der Ionisationsschwelle keine Möglichkeiten der direkten Stoßionisation. Wie in Abb.6.3 zu sehen ist, besitzt das erste Elektron genau dann die maximalen Rückkehreregien, wenn das überlagerte Laserfeld

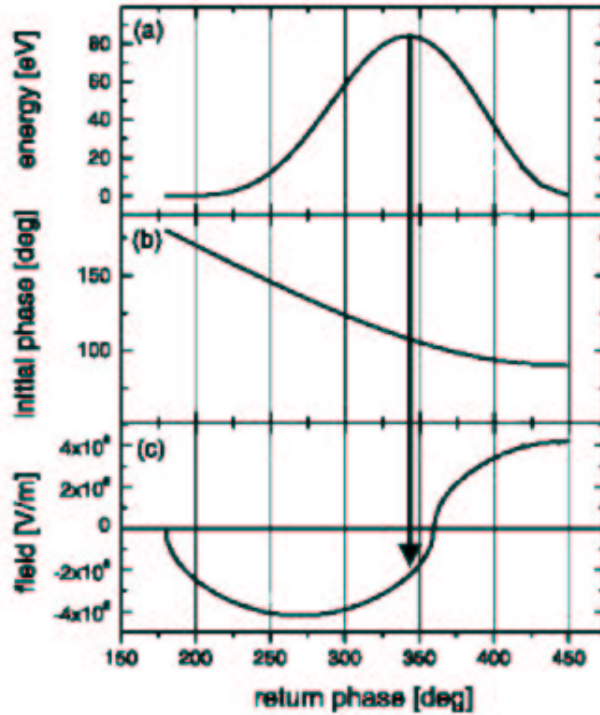


Abb. 6.3. In Abhängigkeit von der Rückkehrphase ist a) die Rückkehrenergie des ersten Elektrons, b) die Startphase des ersten Elektrons beim Tunneln und c) die elektrische Feldstärke des Laserfeldes zur Rückkehrzeit aufgetragen [2].

sehr niedrig ist. Demnach reicht die Kombination aus Rückkehrenergie und Absenken der Schwelle auch bei $70 Tw/cm^2$ nicht aus, um das zweite Elektron direkt zu ionisieren.

Im Unterschied dazu besitzt die Anregung mit nachfolgender Feldionisation einen eher sequentiellen Charakter. Nach der inelastischen Streuung wird das zweite Elektron zuerst nur angeregt und später feldionisiert, die zwei Elektronen starten zu unterschiedlichen Zeiten in das Laserfeld. Die daraus resultierenden unterschiedlichen Driftimpulse führen zu den in [31] berechneten klassisch erlaubten Bereichen und sind in Abb.6.7.a und Abb.6.7.b mit den, bei uns gemessenen Intensitäten dargestellt:

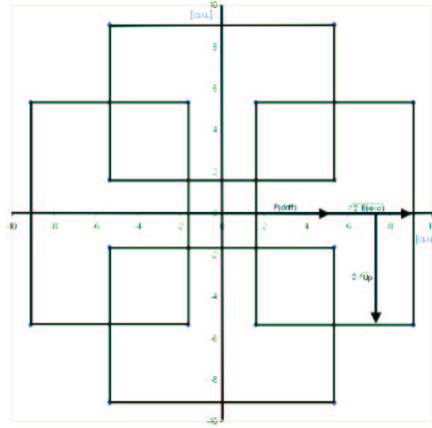


Abb.6.3.1.a $120 \cdot TW/cm^2$

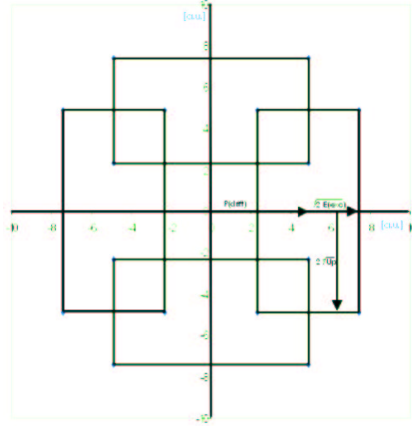


Abb.6.3.1.b $100 \cdot TW/cm^2$

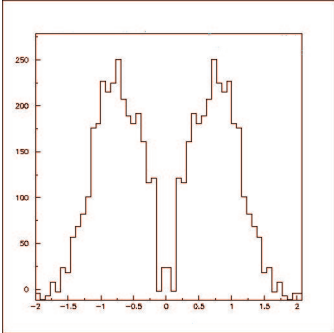
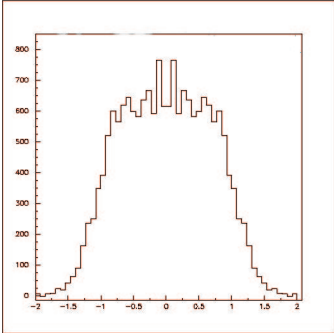
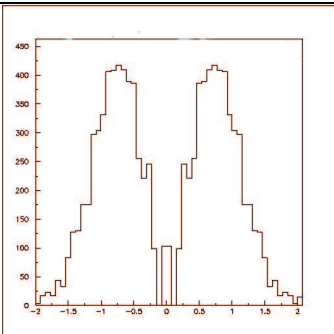
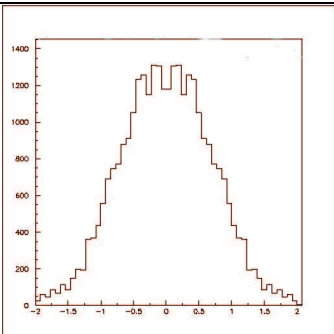
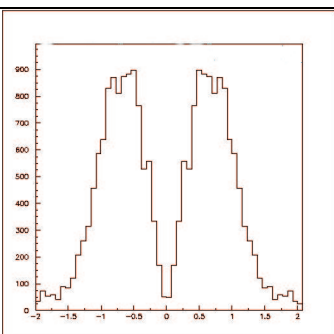
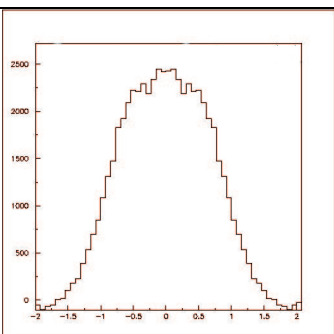
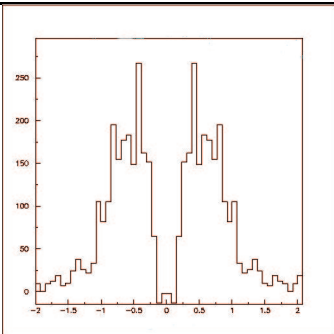
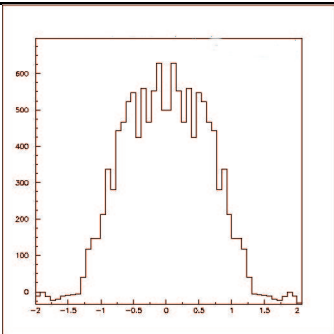
Bei diesem Mechanismus ist eine zusätzliche Symmetrie entlang der Achsen zu beobachten. Aufgrund des voneinander unabhängigen Emissionsprozesses der Elektronen, sind die Teilchen in allen vier Quadranten des Impulsraumes zu finden.

Für die beiden niedrigeren Intensitäten reicht die maximale Rückkehrenergie des ersten Elektrons schon nicht mehr aus, um ein noch gebundene Elektron auf die erste Anregungsstufe des Ar^{1+} zu heben.

$I [TW/cm^2]$	$E_{kin}^{max} [eV]$	Erste Anregungsstufe von Ar^+ [eV]
70	13.25	15.7
60	11.38	15.7

Elektronenkorrelation bei Anregung und (e,2e)-Stoß

Die zwei Streumechanismen lassen sich aufgrund des unterschiedlichen Symmetrieverhaltens voneinander separieren. Im ersten und dritten Quadranten sind sowohl Elektronen aus dem (e,2e)-Stoß, sowie aus der Anregung zu finden. Dagegen wird der zweite und vierte Quadrant allein aus den „Anregungselektronen“ gefüllt. Mit Hilfe von Spiegelungen läßt sich damit ein vollständiges Impulsbild des Anregungsprozesses erzeugen. Subtrahiert man dieses von dem insgesamt gemessenen Impulsbild, bleibt allein die Verteilung aufgrund des Stosses übrig (unter der Annahme, dass nur diese zwei Prozesse wesentlich zur nicht-sequentiellen Doppelionisation beitragen!).

Intensität	(e,2e)-Stoß	Anregung + Feldionisation
$120 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.3.2.a</p>	 <p>Abb.6.3.2.e</p>
$100 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.3.2.b</p>	 <p>Abb.6.3.2.f</p>
$70 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.3.2.c</p>	 <p>Abb.6.3.2.g</p>
$60 \cdot TW/cm^2$	 <p>Abb.6.3.2.d⁸²</p>	 <p>Abb.6.3.2.h</p>

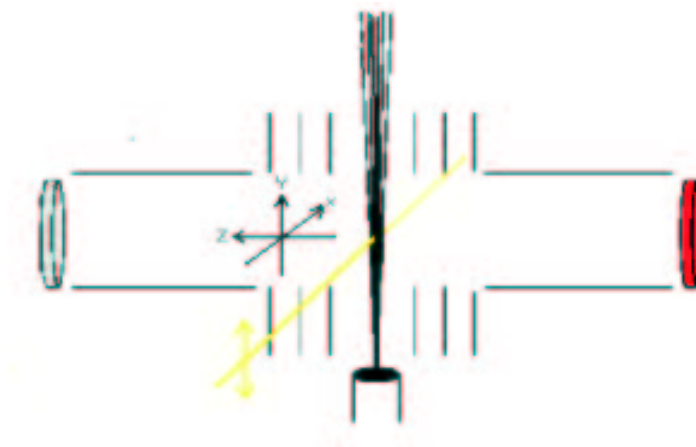


Abb. 6.4. Koordinatensystem bei vertikaler Polarisation

Der (e,2e)-Prozess allein zeigt die charakteristische Doppelpeak-Struktur. Die Anregung füllt mit einer Verteilung um die Null das Tal zwischen den zwei Peaks, so dass die in Abb.6.2.1.(a-d) gezeigten Recoil-Impulsverteilung zu beobachten sind.

Bei den Intensitäten $70\text{TW}/\text{cm}^2$ und $60\text{TW}/\text{cm}^2$ sind weiterhin Stoß- und Anregungselektronen zu beobachten. Sind die zuerst angeregten und später feldionisierten Elektronen noch durch ein Ansenken der Anregungsniveaus des Ar^{1+} -Ions mit Hilfe des überlagerten Laserfeldes erklärbar, so muss bei den direkt ionisierten Elektronen ein weiterer Effekt eine bedeutende Rolle spielen.

Fazit: Die zwei Rückstreumechanismen Stoß und Anregung liegen teilweise in unterschiedlichen Bereichen des Phasenraumes und lassen sich so voneinander separieren. Der Stoß zeigt die charakteristische Doppelpeakstruktur im Ionenpuls, während die Anregung eine Verteilung um Null aufweist. Nach der beobachteten gesamten Recoil-Impulsverteilung scheint die Anregung bei Argon der dominante Prozess zu sein; auch hier zeigt sich der Einfluss des Laserfeldes, indem die Anregungsniveaus des Ar^{1+} -Ions beim Rückstreuprozess abgesenkt werden.

6.3 Kanada-Ergebnisse - Vertikale Polarisation

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, dass die Impulskomponente parallel zur Laserpolarisation durch die Wechselwirkung der Teilchen mit dem Laserfeld bestimmt wird. Diese Beobachtungsrichtung gibt damit Aufschluss über die „externen“ Bedingungen des Rückstreu-Prozesses.

Dagegen wird die Impulskomponente senkrecht zur Laserpolarisation nicht von dem elektrischen Feld des Laserpulses beschleunigt und kann so den Drei-Teilchen

Impulsaustausch im Rückstreu-Prozess zeigen: Die Wechselwirkung des zurückkehrenden Elektron mit dem System gebundenes Elektron + Kern, sowie die korrelierte Bewegung der beiden Elektron nach dem Verlassen des Ions in Anwesenheit eines starken elektromagnetischen Feldes.

Die Impulse senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lasers sind sehr klein (< 0.5 a.u.). Zusätzlich wird die Impulsaufösung durch die interne Gasjetgeschwindigkeit limitiert, so dass die Impulsverteilungen in den beiden Richtungen senkrecht zur Jetrichtung wesentlich schmaler sind als die in Jetrichtung. Um nun eine hinreichend gute Auflösung für die beiden Impulskomponenten der Rückstoßionen senkrecht zur Polarisation zu erhalten, wurde in dieser Messung die Polarisationsrichtung parallel zur Gasjetausbreitung gewählt.

Das Koordinatensystem für vertikale Polarisation zeigt Abb.6.4, das Laserfeld schwingt vertikal zur Spektrometerachse (y-Achse).

(Die gleiche Messreihe für vertikale Polarisation wurde zusätzlich mit einer kleineren Spektrometerspannung durchgeführt und zeigt in [52] dieselben Ergebnisse.)

6.3.1 Korrelierte Elektronenbewegung

Um die Ergebnisse der „Frankfurt-Messung 2000/2001“ zu erweitern, soll hier das Drei-Körper-Problem und speziell die Coulom-Wechselwirkung in Anwesenheit eines starken Laserfeldes genauer untersucht werden:

Die bisher nur in integrierter Form vorliegende transversale Impulskomponente konnte in dieser Messung mit Hilfe der vertikalen Polarisation gut aufgelöst beobachtet werden. Die folgenden Abbildungen zeigen jeweils die transversale Impulsverteilung des zweiten Elektrons. Dabei wurde das Koordinatensystem ohne Beschränkung der Allgemeinheit so gewählt, dass der Transversalimpuls des ersten Elektrons die z-Achse definiert. Die Laborkoordinaten xz wurden dafür event für event mit Hilfe einer Drehmatrix um den Winkel θ gedreht (siehe Abb.6.5)

$$\begin{pmatrix} x' \\ z' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} x \\ z \end{pmatrix} \quad (6.14)$$

Ein Ergebnis dieser Messung zeigt Abb.6.6: eine deutliche back-to-back Emission entlang der z-Achse ist zwischen den beiden Elektronen zu erkennen und kann auf zwei mögliche physikalische Ursachen zurückgeführt werden:

1. Die Abstoßung könnte direkt aus dem Impulsaustausch im (e,2e)-Stoß resultieren.
2. Die Abstoßung kann eine Folge der Elektronen-Elektron-Wechselwirkung im Endzustand, also nach dem inelastischen Streuprozess sein.

Um Aufklärung über den dominierenden dieser beiden Prozesse zu erhalten wird auf eine Modellrechnung zurückgegriffen, in der beide möglichen Wechselwirkungen selektiv „ein- und ausgeschaltet“ werden können.

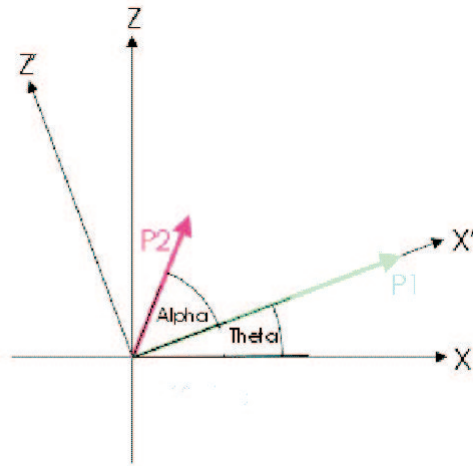


Abb. 6.5. Koordinatentransformation

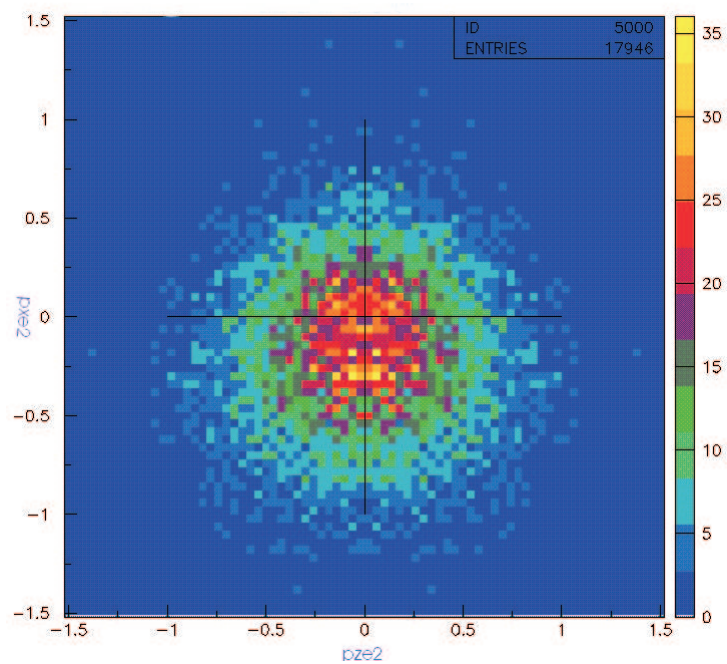


Abb. 6.6. Das zweite Elektron ist im System des ersten Elektrons aufgetragen; genaueres siehe Text.

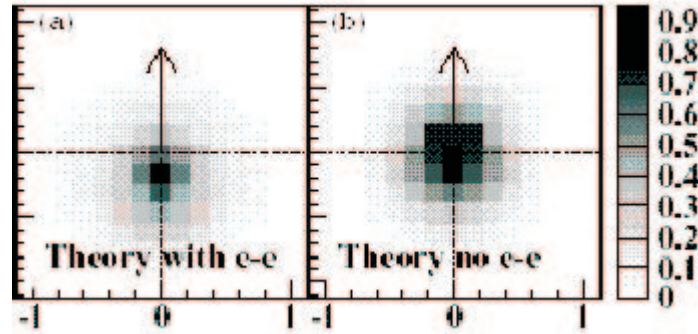


Abb. 6.7. S-Matrix Rechnungen zur nicht-sequentiellen Doppelionisation: Das zweite Elektron ist auch hier im Impulssystem des ersten aufgetragen. Im ersten Bild wird von einer Elektron-Elektron-Wechselwirkung zwischen den beiden Teilchen im Kontinuum ausgegangen, im zweiten Bild nicht.

In unserem Fall erfüllen die S-Matrix-Rechnungen diese Bedingungen und wurden mit den folgenden unterschiedlichen Annahmen durchgeführt (die zugehörigen Gleichungen sind in [52] zu finden):

- S-Matrix mit Elektron-Elektron-Wechselwirkung „im Kontinuum“
- S-Matrix ohne Elektron-Elektron-Wechselwirkung „im Kontinuum“

In Abb.6.7 ist deutlich zu sehen, dass die back-to-back Richtung von der Endwechselwirkung der beiden, im Kontinuum befindlichen Elektronen zu kommen scheint (Bild a). Sobald diese „ausgeschaltet“ wird (Bild b) verschwindet der Effekt und es ergibt sich eine um Null symmetrische Verteilung.

Das Laserfeld jedoch spielt in der Ionisation des zweiten Elektrons eine große Rolle: Die Emission der beiden Elektronen ins Kontinuum wird zwar durch die Polarisationsrichtung dominiert, der inelastische Streuprozess selbst spielt sich allerdings im gesamten Raumwinkel ab. Indem der Rückstreuprozess unterstützt kann das Laserfeld so auch auf die transversale Impulskomponente Einfluß ausüben und sie in diesem Sinne mitbestimmen.

Fazit: Mit Hilfe der S-Matrix-Rechnungen kann ein „zeitlich geordneter“ Ablauf von Wechselwirkungen in dem Rückstreuprozess erstellt werden. Der Vergleich zwischen den experimentell und theoretisch berechneten Elektronenimpulsen zeigt, dass die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Kontinuum der Grund für die back-to-back-Bewegung der Elektronen zu sein scheint. Die Ergebnisse der Frankfurt-Messung werden in dieser Hinsicht bestätigt.

Weiter gibt es die Vermutung, dass auch das Laserfeld durch den inelastischen Streuprozess einen Einfluß auf die transversalen Impulskomponenten ausüben kann.

6.3.2 Einfluss des Ions

Bei dem inelastischen Streuprozess ist zusätzlich zu den Elektronen auch der Kern des Atoms beteiligt. Um seine mögliche Auswirkung zu überprüfen, wur-

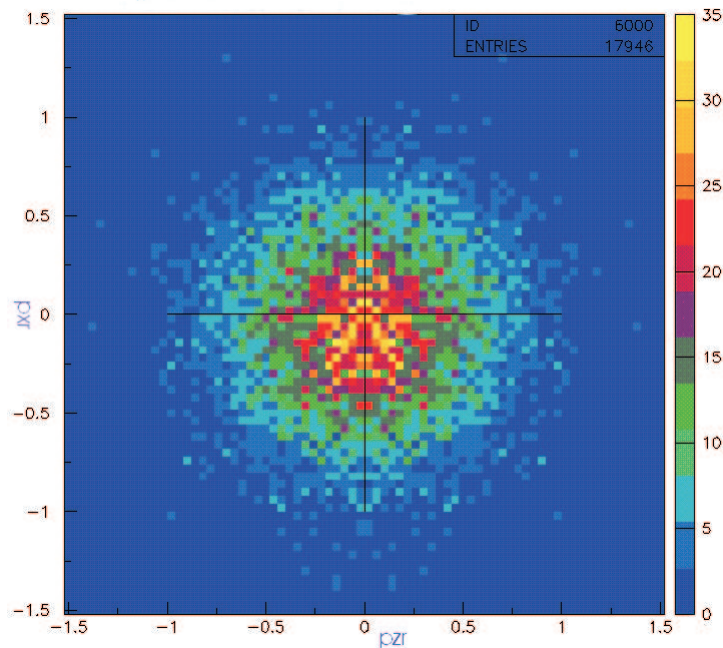


Abb. 6.8. Recoilimpuls im System des ersten Elektrons

de das gemessene Recoil - analog zum vorherigen Abschnitt - im Impulssystem des ersten Elektrons dargestellt (Abb.6.8).

Auch hier zeigt sich eine leichte back-to-back Korrelation, die als Streuung des zurückkehrenden Elektrons an dem Kern interpretiert werden kann. Dies ist in guter Übereinstimmung mit einer Vielzahl von (e,2e)-Prozessen ohne die Anwesenheit eines Laserfeldes. In der Einfachionisation von Helium mit Protonen (cite60) zeigt sich ein analoger Impulsaustausch: In Abb.6.9 ist eine back-to-back Emission zwischen Projektil (vergleichbar mit dem zurückkehrenden Elektron in unserem Fall) und Kern zu beobachten.

Die zu Abb.6.8 zugehörige S-Matrix-Rechnung zeigt Abb.6.10, die Rückstreuung wird hier nicht beobachtet.

Fazit: Die inelastischen Rückstreuung kann nicht allein durch die Elektronenkorrelation beschrieben werden, auch das Ion hat einen nicht zu vernachlässigbaren Einfluß auf den Prozeß. In dem jetzigen theoretischen Modell konnte dieser Effekt noch nicht nachvollzogen werden; hier scheinen weitere, wichtige Bausteine wie z.B. die Wechselwirkung zwischen den, im Kontinuum befindlichen Elektronen mit dem Ion oder der Anregungsprozeß zu fehlen.

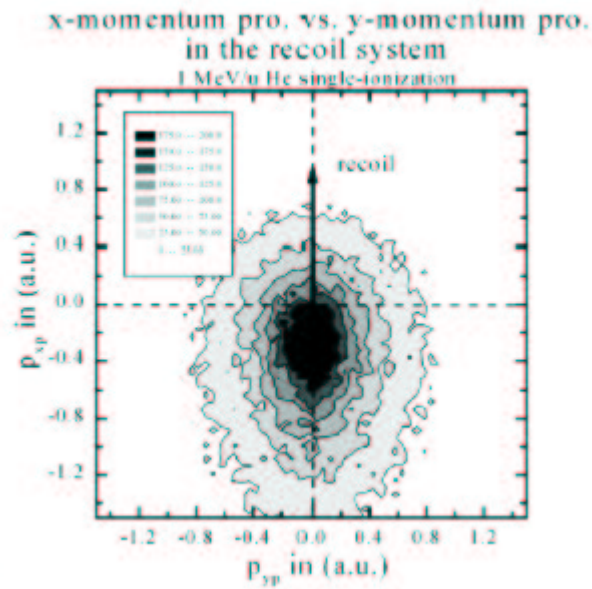


Abb. 6.9. Blick auf die Ebene senkrecht zur Projektilachse: Die Impulse des auslaufenden Projektils werden auf die zur Stoßebene senkrechte Ebene projiziert. Das Rückstoßion wird entlang der positiven x-Achse festgehalten.

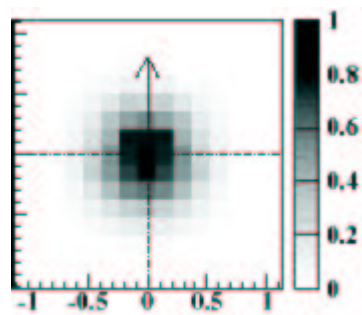


Abb. 6.10. Berechneter Recoilimpuls im System des ersten Elektrons

Zusammenfassung und Ausblick

Man stellt die Wissenschaft aus Tatsachen her, wie man ein Haus aus Steinen baut; aber eine Anhäufung von Tatsachen ist so wenig eine Wissenschaft, wie ein Steinhaufen ein Haus ist.

HENRI POINCARÉ

In dieser Arbeit wurde die nicht-sequentielle Doppelionisation von Argon bei verschiedenen Laserintensitäten und -polarisationen behandelt. Qualitativ lässt sich dieser Prozess gut durch das von Corkum entwickelte Rückstreu-Modell beschreiben: Im ersten Schritt tunnelt das Elektron durch die vom Laserfeld gesenkte Potentialbarriere des Atoms. Im zweiten Schritt bewegt es sich als unabhängiges Teilchen im Laserfeld und nimmt in Abhängigkeit von der Phase des Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation Energie auf. Die dabei maximal mögliche Energie entspricht $3.17 \cdot U_p$ und ist so von der Intensität des Laserfeldes abhängig. Im letzten Schritt wird das Elektron zurück zum Ion beschleunigt und teilt seine Energie in einer inelastischen Streuung mit einem zweiten, noch gebundenen Elektron. Ist die Rückkehrenergie groß genug, kann das zweite Elektron direkt ionisiert werden; bei kleineren Energien wird das zweite Elektron nur angeregt und wird später feldionisiert. Quantitative Modelle wie die S-Matrix-Rechnung basieren auf der KFR-Theorie und können in einem Feynmangraphen dargestellt werden. Dieser zeigt zwar den ablaufenden Mechanismus sehr gut, gibt allerdings nur Information über die Reihenfolge der Wechselwirkungen und nicht über die volle Zeitentwicklung.

In einer speziell für das Experiment aufgebauten COLTRIMS-Apparatur werden Elektronen und Ionen mit Hilfe von elektrischen und magnetischen Feldern auf zwei ortsempfindliche Detektoren separiert. Durch die Messung von Flugzeit und Auftreffort können die Anfangsimpulse aller an der Reaktion beteiligten Teilchen berechnet werden. Das verwendete Ti:Sa-Lasersystem liefert 50fs Pulse bei einer Wiederholungsrate von 30kHz mit einer maximalen Intensität von $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Mit Hilfe eines Parabolspiegels wird der Laserstrahl auf den Gasjet fokussiert; die gemessene Größe des „Fokuspunktes“ liegt bei $3 \mu\text{m}$ FWHM.

Diese Arbeit konzentriert sich auf die Untersuchung des Rückstreu-Prozesses

und lässt sich in zwei Bereiche unterteilen:

- Die Messung der nicht-sequentiellen Doppelionisation mit der Polarisation parallel zur Spektrometerachse liefert Einsichten in die „externen“ Bedingungen der Rückstreuung. Die Impulse parallel zur Laserpolarisation werden durch die Wechselwirkung zwischen Elektronen und Laserfeld dominiert, so dass beide Elektronen in die gleiche Hemisphäre emittiert werden. Bei allen gemessenen Intensitäten von $120\text{TW}/\text{cm}^2$, $100\text{TW}/\text{cm}^2$, $70\text{TW}/\text{cm}^2$ und $60\text{TW}/\text{cm}^2$ überschreitet die Rückkehrenergie des ersten Elektrons nicht die erste Ionisationsschwelle von Ar^+ ; dennoch konnte bei allen Intensitäten die für die nicht-sequentielle Doppelionisation typische Elektronenkorrelation gezeigt werden. Wie bei dem Tunnelprozeß des ersten Elektrons, wird auch im Rückstreuungsprozeß die Ionisations- und Anregungsschwelle des Ar^{1+} -Ions durch das überlagerte Laserfeld gesenkt und nimmt so Einfluss auf den inelastischen Streuprozess. Mit Hilfe des klassischen Rückstreumodells und unter Berücksichtigung der abgesenkten Ionisationsschwelle in Abhängigkeit von der Rückkehrphase des ersten Elektrons wurde jedoch gezeigt, dass bei den zwei niedrigen Energien von $70\text{TW}/\text{cm}^2$ und $60\text{TW}/\text{cm}^2$ auch durch ein Absenken der Schwelle die Rückkehrenergie des ersten Elektrons nicht zur direkten Ionisation ausreicht. Hier muss demnach ein weiterer Effekt den (e,2e)-Stoß unterstützen. Anregungs- und Stoßionisation liegen teilweise in unterschiedlichen Bereichen des Phasenraums und können so voneinander getrennt werden. Nur die direkte Ionisation des zweiten Elektrons zeigt die typische Doppelpeakstruktur. Dagegen sind die Anregungselektronen um die Null verteilt und füllen so das Tal in der Ionenimpulsverteilung. In Abhängigkeit von der Intensität des Laserfeldes wurde eine Verbreiterung der Impulsverteilung sowie eine Formänderung der Maxima beobachtet. Dabei scheint der Anfangsimpuls der Elektronen und somit der Rückstreu-Prozess selbst bei niedrigeren Intensitäten einen größeren Einfluss auf die Endimpulse auszuüben als bei höheren Intensitäten. Die „Form“ der Maxima scheint dem zu widersprechen: Bei niedrigen Intensitäten zeigt sich eine sehr längliche Form der Maxima, wodurch eine „Vorzugsrichtung“ parallel zur Laserpolarisation und so die Dominanz der Laserwechselwirkung ausgezeichnet wird. Dagegen wird bei höheren Intensitäten eine runde Form der Maxima beobachtet, so dass hier von einer Gleichverteilung zwischen Laserwechselwirkung und Coulombwechselwirkung ausgegangen werden kann. Von einem quantitativen Verständnis sind wir heute noch weit entfernt. Keine der im Moment vorliegenden Rechnungen kann die Details der Impulsverteilungen erklären.
- Die nicht-sequentielle Doppelionisation bei vertikaler Polarisation liefert einen Einblick in die „internen“ Bedingungen der Rückstreuung. In der Richtung senkrecht zur Laserpolarisation hat das Laserfeld keinen direkten Einfluss, so dass die 3-Körper-Wechselwirkung untersucht werden kann. Beobachtet wird eine back-to-back Emission der beiden Elektronen im Kontinuum, sowie eine Abstoßung des Ions. Während ersteres durch S-Matrix-Rechnungen bestätigt und auf die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Endzustand zurückgeführt werden kann, wird die back-to-back Emission des Ions nicht reproduziert. Hier scheinen weitere Bausteine wie

der Einfluss des Ions auf die Elektronenbewegung im Kontinuum sowie der gesamte Anregungsprozeß zu fehlen.

Die Frage nach dem Einfluss des Laserfeldes auf den Rückstreuprozess und auf die Elektronenbewegung im Kontinuum lässt sich sehr gut mit Hilfe eines COLTRIMS-Experimentes untersuchen. Der Ionisationszeitpunkt des ersten Elektrons bestimmt den weiteren Ablauf des Prozesses, die mit dem Laserfeld korrelierten Effekte der Endimpulse können einzelnen Zeitabschnitten zugeordnet werden. Viele weitere Fragen sind hier noch ungeklärt: Wo befindet sich die Schwellenenergie, ab der keine Doppelionisation mehr stattfinden kann? Lässt sich dieser Wert theoretisch bestätigen? Welcher Effekt unterstützt die direkte Ionisation bei niedrigen Intensitäten? Dominiert bei niedrigen Intensitäten die Anregungs- und bei hohen Intensitäten die Stoßionisation? Welche Rolle spielen die, bei der Rückstreuung entstandenen Anfangsimpulse gegenüber den Driftimpulsen? Wie ist die Form der Maxima zu erklären?

Dagegen kann die Frage nach der 3-Körper-Wechselwirkung und dem Rückstreu-prozeß selbst nicht anhand der gemessenen Endimpulse beantwortet werden. Die Art, wie die Elektronen ihre Energie aufteilen kann durch die Coulomb-Abstoßung der Teilchen im Kontinuum überschattet werden; der Kern übt nicht nur auf den inelastischen Streuprozess Einfluß aus, sondern auch auf die Bewegung der Elektronen im Laserfeld. Die im Endzustand beobachteten Effekte lassen sich so nicht einem bestimmten „Zeitabschnitt“ der nicht-sequentiellen Doppelionisation zuordnen.

Eine Möglichkeit zur Bestimmung des Zeitablaufes bietet die *Bicolor-Multiphotonenionisation*, die bisjetzt zur Untersuchung von Einfachionisation genutzt wurde [55]. Dazu werden zwei intensive Laserstrahlen mit unterschiedlichen Wellenlängen, die ganzzahlige Vielfache voneinander sind, gleichzeitig auf ein Gasatom fokussiert. Durch eine kontrollierte Veränderung der Phasenbeziehung zwischen diesen beiden Feldern kann der Ionisationsprozess aktiv beeinflusst und daher genauer untersucht werden.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung eines Laseraufbaus [46].	6
2.2	Chirped Pulse Amplification [59]	7
2.3	Simple Man's Model [16]	8
2.4	Experimentell bestimmte Spektren von Paulus et al. [15] bei einer Laserintensität von $2 - 3 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ mit einer Wellenlänge von 630nm und einer Pulslänge von 40fs.	11
2.5	Mögliche Startzeiten t_0 und Rückkehrzeiten t_1 [16]: Die Tangenten an $\alpha(t) = \frac{e}{m} \int dt A(t)$ kennzeichnen ein Maximum an Rückkehrenergie. Das Intervall möglicher Rückkehrzeiten ist durch $0 < \omega t_1 < 2\pi$ festgelegt. Die daraus möglichen Startzeiten liegen in den grau unterlegten Intervallen.	12
2.6	Als Funktion der Flugzeit ist hier die kinetische Energie zum Zeitpunkt der Rückkehr (gestrichelte Linie, siehe Gl.(2.13)), sowie die Driftenergie nach einer Rückstreuung (durchgezogene Linie) und nach einer Vorwärtsstreuung (gepunktete Linie) aufgetragen.	13
2.7	Das Spektrum zeigt höher Harmonische von Argon bei Laserintensitäten von a) $3 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$, b) $2.2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ und c) $1.6 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ aus [4]. Bis zur 7ten Harmonischen zeigt sich der Abfall des Potenzgesetzes, im darauffolgenden Plateau bleibt die Anzahl der Photonen unabhängig von der Ordnung mit zunehmender Intensität weitgehend gleich. Aus nicht ersichtlichen Gründen konnte bei diesem Experiment die 13te Harmonische nicht nachgewiesen werden.	14
2.8	Gemessene Einfach- und Doppelionisation von Neon bei linearer Polarisation und einer Pulsdauer von 25fs bei einer Wellenlänge von 800nm [22]. Die durchgezogene Linie gibt die berechneten Ionensignale allein für die sequentielle Dopelionisation an. Die gemessenen Ne^{2+} Signale weichen um viele Größenordnungen von der Annahme eines sequentiellen Mechanismus ab. Die dazugehörigen Impulsverteilungen zeigt Fig.2.10.	15
2.9	Schematische Darstellung des Rescattering-Prozesses [47].	16
2.10	Gemessene Recoil-Impulsverteilungen bei verschiedenen Intensitäten (zugehöriges Bild von Abb.2.8)[22].	17
2.11	Berechnete Summenimpulse für Neon bei einer Intensität von $8 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$. Teil a) zeigt ein Dichteplot mit den in b) und c) gezeigten Schnitten entlang $p_{\perp} = 0$ und entlang einiger Werte von p_{\parallel}	19

2.12	Gemessene Ar^{2+} Impulsverteilungen (Kreise) parallel zur Polarisationsachse bei a) $3.75 \cdot 10^{14}W/cm^2$ und b) $12 \cdot 10^{14}W/cm^2$. Die Verteilungen sind integriert über die Richtungen senkrecht zur Polarisation. Als Vergleich sieht man die Ar^{1+} Impulsverteilungen (gestrichelte Linie).	20
2.13	Elektronen-Spektrum der nicht-sequentiellen Doppelionisation mit abgezogenem Untergrund [28]. Die Fehlerbalken und zwei Kurven zeigen die Unsicherheit der Daten an.	21
2.14	Die mit Hilfe der ADK-Theorie berechneten Tunnelrate angeregter Ar^{1+} Ionen (aus [28]).	22
2.15	Longitudinale Impulsverteilung beider Elektronen bei a) $3.8 \cdot 10^{14}W/cm^2$ und b) $15 \cdot 10^{14}W/cm^2$	23
2.16	Aufgetragen sind die longitudinale Impulse von Elektron1 gegenüber Elektron2 für Ar-Doppelionisation mit 25fs Laserpulsen und einer Intensität von $0.25PW/cm^2$. Die durchgezogene Linie zeigt den berechneten Phasenraum für (e,2e)-Prozess, die gestrichelte Linie den Bereich für den Anregungsprozess [31].	24
2.17	Elektronenimpulse der Ar-Doppelionisation bei einer Intensität von $4.7 \cdot 10^{14}W/cm^2$, wobei die Impulse von Elektron1 gegenüber Elektron2 aufgetragen sind. Die Spektren zeigen die Impulse parallel zur Polarisationsachse mit verschiedenen Bedingungen der transversalen Impulse eines Elektrons.	25
2.18	Ein, mit der S-Matrix entwickelter Feynmangraph zur Beschreibung des Rückstreumechanismus [32].	26
3.1	COLTRIMS (Cold Target Ion Momentum Spectroscopy	30
3.2	Schlierenbild einer rotationssymmetrischen Supersonic-Jet-Expansion [38].	31
3.3	Schematische Struktur einer Jet-Expansion [39].	32
3.4	Gerichteter Gasjet	33
3.5	Zu sehen ist die Ionen-Flugzeitverteilung eines Überschallgassstrahls (schmale Verteilung) und eines warmen diffusen Hintergrundgases (breite Verteilung) [41].	34
3.6	Skizze eines Spektrometerarms [37]: Das Teilchen wird mit Hilfe des Absaugfeldes in Richtung Detektor gelenkt, durchfliegt danach einen feldfreien Raum (Driftstrecke) und wird im Detektor selbst stark nachbeschleunigt.	35
3.7	XY-Ansicht der Bewegungen der Elektronen: Die grüne Trajektorie startet unter einem Winkel von 30Grad, die rote Trajektorie unter einem Winkel von 60Grad und die blaue Trajektorie startet senkrecht zur Spektrometerachse.	36
3.8	Detektoraufsicht der in Abb.3.7 beschriebenen Elektronen. Sehr schön sieht man die Abhängigkeit der Gyrationperiode von der senkrechten Komponente der Anfangsgeschwindigkeit.	36
3.9	Zu sehen sind die in Abb.3.7 beschriebenen Elektronen in 3D-Ansicht.	37
3.10	Schematischer Aufbau eines <i>micro channel plate</i> [57].	38

3.11	Entstehung einer Elektronenlawine: Das nachzuweisende Teilchen wird in einem elektrischen Feld beschleunigt und kann beim Auftreffen auf eine Wand mehrere Elektronen herausschlagen. Diese nehmen weiter Energie im Feld auf und schlagen ihrerseits noch mehr Elektronen heraus. Mit dieser Art der Vervielfachung kann eine Verstärkung von 10^3 bis 10^4 erreicht werden.	38
3.12	Chevron-Anordnung: Zwei MCPs werden mit nicht parallel zueinander verlaufenden Kanalachsen hintereinander geschaltet. . .	39
3.13	Die Anode besteht aus vier dünnen Drähten, die um einen Metallkörper gewickelt und durch Keramik isoliert sind. Genauere Beschreibung siehe Text.	40
3.14	Die aufgenommenen Daten werden in Form eines <i>List Mode Files</i> gespeichert, so dass das Experiment später auf dem Computer Event für Event nachvollzogen werden kann.	41
3.15	„flow chart of CoboldPC data taking and analysis“	42
3.16	Energieniveaus des Titan:Saphir-Kristalls [53]	43
3.17	Emissionsverhalten des Titan:Saphir-Kristalls	43
3.18	Schematischer Aufbau eines Ti:Sa-Lasers.	44
3.19	Fokussierung eines Gaußstrahls mittels einer Linse (<i>Fernfeldnäherung</i>)	45
4.1	1-stufiger Argon-Gasjet	48
4.2	Photo des Gasjets: Um die Dichtung des Düsenplättchens zu überprüfen, wird die ganze Spitze des Kaltkopfes in Ethanol getaucht.	48
4.3	Simulierte Ionenflugbahnen in der yz-Ebene mit Gitter.	50
4.4	Simulierte Ionenflugbahnen in der yz-Ebene ohne Gitter.	51
4.5	Recoildetektor	52
4.6	Simulierte Elektronentrajektorien in der yz-Ebene	52
4.7	Die Totzeitzone bei A) einer quadratischen Anode und B) Hexanode, wenn das erste Teilchen in der Mitte auftrifft [42].	53
4.8	Hexanode	53
4.9	Schematische Darstellung des gesamten Spektrometers mit Detektoren.	54
4.10	Photo des gebauten Spektrometers.	54
4.11	Photo des gesamten COLTRIMS-Aufbaus.	55
4.12	Schaltplan der verwendeten Elektronik; der eingerahmte Bereich zeigt die Koinzidenz-Verschaltung.	56
5.1	Das Verhältnis von Ar^{2+} zu Ar^{1+} ist als Funktion der Laserintensität aufgetragen: Die durchgezogene Linie zeigt S-Matrix Rechnungen aus [32], die kleinen Kreise sind von [22], die weissen Kreise von [45], sowie die schwarzen Kreise von [26].	59
5.2	Koordinatensystem bei horizontaler Polarisierung	59
5.3	Recoilimpuls gegen Elektronenimpuls aufgetragen; aufgrund Impulserhaltung muss sich eine Diagonale ergeben.	66
5.4	Die Projektion der Trajektorien auf die Detektorebene.	67
6.1	Impulsverteilung der einfach (links) und doppelt geladenen Ionen (rechts).	70

6.2	Das Ratio von doppelt zu einfach geladenen Ionen in Abhängigkeit von der Intensität aus [49].	72
6.3	In Abhängigkeit von der Rückkehrphase ist a) die Rückkehrenergie des ersten Elektrons, b) die Startphase des ersten Elektrons beim Tunneln und c) die elektrische Feldstärke des Laserfeldes zur Rückkehrzeit aufgetragen [2].	80
6.4	Koordinatensystem bei vertikaler Polarisierung	83
6.5	Koordinatentransformation	85
6.6	Das zweite Elektron ist im System des ersten Elektrons aufgetragen; genaueres siehe Text.	85
6.7	S-Matrix Rechnungen zur nicht-sequentiellen Doppelionisation: Das zweite Elektron ist auch hier im Impulssystem des ersten aufgetragen. Im ersten Bild wird von einer Elektron-Elektron-Wechselwirkung zwischen den beiden Teilchen im Kontinuum ausgegangen, im zweiten Bild nicht.	86
6.8	Recoilimpuls im System des ersten Elektrons	87
6.9	Blick auf die Ebene senkrecht zur Projektilachse: Die Impulse des auslaufenden Projektils werden auf die zur Stoßebene senkrechte Ebene projiziert. Das Rückstoßion wird entlang der positiven x-Achse festgehalten.	88
6.10	Berechneter Recoilimpuls im System des ersten Elektrons	88

Literaturverzeichnis

- [1] Weber et al., J.Phys.B.: At.Mol.Opt.Phys.**33**(2000)L127-133
- [2] Weckenbrock et al., J.Phys.B.: At.Mol.Opt.Phys.**34**(2001)L449-455
- [3] M. Ferray et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **21**, L31 (1988)
- [4] X. F. Li et al., Phys. Rev. A **39**, 5751 (1989)
- [5] P. Agostini et al., Phys. Rev. Lett. **42**, 1127 (1979)
- [6] A. LHuillier et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt.Phys. **16**, 1363 (1983)
- [7] D. N. Fittinghoff et al., Phys. Rev. Lett. **69**, 2642 (1992)
- [8] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [9] L. V. Keldysh, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **47**, 1945 (1964), Engl. trans. Sov. Phys.-JETP **20**, 1307 (1964)
- [10] L. D. Landau, Quantum Mechanics (Non-relativistic Theory, Course of Theoretical Physics (Pergamon, New York, 1964)
- [11] M. Lewenstein et al., Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [12] R. P. Feynman, Rev. Mod. Phys. **20**, 367 (1948)
- [13] R. P. Feynman and A. R. Hibbs, Quantum Mechanics and Path Integrals (McGraw- Hill, New York, 1965)
- [14] R. R. Freeman et al., Phys. Rev. Lett **59**, 1092 (1987)
- [15] G. G. Paulus et al., Phys. Rev. Lett **72**, 2851 (1994)
- [16] R. Kobold, Dissertation (2001)
- [17] R. Kobold et al., Opt. Commun. **179**, 39 (2000)
- [18] P. Antoine et al., Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996)
- [19] A. Baltuska et al., Nature **421**, 611 (2003)
- [20] A. LHuillier et al., Phys. Rev. Lett. **48**, 1814 (1982)
- [21] B. Walker et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 1227 (1994)
- [22] S. Larochelle et al., J. Phys. B **31**, 1201 (1998)

- [23] U. Eichmann et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 3550 (2000)
- [24] M. Y. Kuchiev, Sov. Phys.-JETP Lett. **45**, 404 (1987)
- [25] R. Moshhammer et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 447 (2000)
- [26] T. Weber et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **33**, 127 (2000)
- [27] T. Weber et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 443 (2000)
- [28] E. Peterson et al., Phys. Rev. A. **64**, 405 (2001)
- [29] R. Moshhammer et al., Phys. Rev. A **65**, 401 (2002)
- [30] T. Weber et al., Nature London **405**, 658 (2000)
- [31] B. Feuerstein et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 04003 (2001)
- [32] A. Becker and F. H. M. Faisal, J. Phys. B **32**, 335 (1999)
- [33] R. Kobold et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 3781 (2000)
- [34] S. Goreslavskii and S. Popruzhenko, J. Phys. B **34**, 239 (2001)
- [35] D. Dundas et al., J. Phys. B **32**, 231 (1999)
- [36] J. B. Watson et al., Phys. REv. Lett. **78**, 1884 (1997)
- [37] M. Schoeffler, Diplomarbeit (2002)
- [38] K. Bier et al., Zeitschrift für Angeandte Physik 13 **11**, 493500 (1961)
- [39] D. Hass, Ph.D. Dissertation , Virginia (2000)
- [40] D. H. Levy, Spektrum der Wissenschaft **74**, (1984)
- [41] P. Jardin et al., AIP Conference Proceedings Vol. **274**, 291 (New York, 1993)
- [42] www.roentdek.de
- [43] M. Schossnig, Dissertation
- [44] D. Dahl, SIMION 3D, User's Manual, 1995
- [45] Guo C et al., Phys. Rev. A **58**, 4271 (1998)
- [46] W. Robertson, Optoelectronic Techniques for Microwave and Millimeter-Wave Engineering (1995)
- [47] C. Trump, Dissertatin (2000)
- [48] M. V. Ammosov et al., Zh. Eksp. Teor. Fiz. **91**, 2008 (1986)
- [49] H. W. van der Hart et al., Phys. Rev. A **62**, 013407 (2000)
- [50] B. Sheehy et al., Phys. Rev. A **58**, 3942 (1998)
- [51] M. Protopatas et al., Physics Report **60**, 389 (1997)

- [52] M. Weckenbrock et al., to be published
- [53] V. Schmidt, Dissertation (2000)
- [54] S. A. Akhmanov et al., Laser Handbook Vol. 2, North Holland Publ.Comp.Amsterdam (1972)
- [55] J. Gauer, Dissertation (2001)
- [56] R. Dörner et al., Advances in Atomic and Molecular Physics (2002)
- [57] Microchannel Plates, Produktbeschreibung, Valvo GmbH (1984)
- [58] A. E. Siegmann, Lasers, University Science Books, Mill Valley, CA (1986)
- [59] <http://www.physics.utoronto.ca/~marj/CPAgen.html>
- [60] Th. Weber, Diplomarbeit

Danke...

... möchte ich allen sagen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Ganz herzlich bedanken möchte ich mich bei Horst Schmidt-Böcking, der sich in einer freundlichen und offenen Art um jeden Studenten kümmert und an ihn glaubt. Durch seine vielen Fragen und neuen Ideen lernt man, nichts als selbstverständlich zu akzeptieren und alles zu hinterfragen.
- Mein besonderer Dank gilt Reinhard Dörner, der stets ein bisschen Ordnung in unser Experiment gebracht und sich für jede noch so oft gestellte Frage Zeit genommen hat. Das Gelingen dieser Arbeit ist zum größten Teil ihm zu verdanken.
- Ohne die physische und auch psychische Hilfe aller „HSB-ler“ wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen, vielen Dank an alle! Besonders der „Kanada-Crew“ Andre, Matthias und Maciek möchte ich für die Zusammenarbeit und Geduld danken; es waren ein paar schöne Tage und auch eine Menge Spaß in Ottawa.
- Meine Freunde und Familie haben stets für genügend Ablenkung gesorgt; vielen Dank für das „was ich bin“.

42 ist die Antwort auf die Frage nach dem Universum, dem Leben und dem ganzen Rest!

DOUGLAS ADAMS

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Diplomarbeit selbstständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Frankfurt am Main, den 28.August 2003